

# **Simulation energiegefilterter elektronenmikroskopischer Bilder unter Berücksichtigung inelastischer Streuprozesse**

Dem Fachbereich Physik  
der Technischen Universität Darmstadt

zur Erlangung des Grades  
eines Doktors der Naturwissenschaften  
(Dr. rer. nat.)

genehmigte

**Dissertation**

von

**Dipl.–Phys. Peter Schorsch**

aus Detmold

Referent: Prof. Dr. H. Rose  
Korreferent: Prof. Dr. mult. A. Richter

Tag der Einreichung: 04.12.2000  
Tag der Prüfung: 12.02.2001

Darmstadt 2001  
D 17

*Herum geht unser Tanz der Fragen im Kreis,  
und in der Mitte sitzt das Geheimnis, das alles weiß.*

*(Robert Frost)*

# Inhaltsverzeichnis

<b>Einführung</b>	<b>I</b>
<b>1 Dichtematrix</b>	<b>4</b>
<b>2 Grundgleichungen der Elektronenstreuung I</b>	<b>7</b>
2.1 Schwerpunkt- und Laborsystem . . . . .	7
2.2 Allgemeine Streutheorie . . . . .	8
2.3 Integralgleichung des Streuproblems . . . . .	11
2.4 Verhalten in unendlicher Entfernung . . . . .	12
2.5 Streuamplitude in der Impulsdarstellung . . . . .	13
2.6 Übergang zur formalen Streutheorie . . . . .	14
2.7 Die Lippmann-Schwinger Gleichung . . . . .	15
2.8 Die S-Matrix . . . . .	17
2.9 Unitaritätsrelation und optisches Theorem . . . . .	18
<b>3 Grundgleichungen der Elektronenstreuung II</b>	<b>22</b>
3.1 Aufstellung der Streugleichungen . . . . .	23
3.2 Vorüberlegung . . . . .	24
3.3 Erster Weg: Stoß am thermischen Objekt . . . . .	25
3.4 Zweiter Weg: Stoß bei festen Kernlagen . . . . .	30
3.5 Vereinfachung des Problems . . . . .	32
<b>4 Grundgleichungen der Elektronenstreuung III</b>	<b>35</b>
4.1 Elastische Streuung bei hohen Energien . . . . .	35
4.2 Multislice-Verfahren für elastische Streuung . . . . .	38
4.3 Inelastische Streuung bei hohen Energien . . . . .	42
4.4 Multislice-Verfahren für inelastische Streuung . . . . .	45
4.5 Eine praktische Realisierung . . . . .	47
<b>5 Propagation durch das Elektronenmikroskop</b>	<b>54</b>
5.1 Fresnelpropagation . . . . .	54
5.2 Propagation durch das Linsensystem . . . . .	58

<b>6</b>	<b>Aspekte der Realisation</b>	<b>64</b>
6.1	Konvergenz der Reihenentwicklung . . . . .	65
6.2	Die Methode der statistischen Phasen . . . . .	70
6.3	Kristall-Multislice Methode für inelastische Streuung . . . . .	73
6.4	Beispiele . . . . .	74
6.5	Fazit . . . . .	77
6.6	Exakte Reihenentwicklungen . . . . .	80
6.7	Berechnung des TDS-Absorptionspotentials . . . . .	86
6.8	Die Phasenmatrix $P(s)$ . . . . .	90
<b>7</b>	<b>Einige weitere exemplarische Ergebnisse der Bildsimulation</b>	<b>99</b>
<b>8</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>103</b>
<b>A</b>	<b>Zum relativistischen Energie-Impuls Satz</b>	<b>107</b>
<b>B</b>	<b>Berechnung der Mittelwerte</b>	<b>109</b>
<b>C</b>	<b>Eigenschaften der Bornschen- &amp; der Hochenergie Streuamplitude</b>	<b>119</b>
C.1	Friedelsymmetrie . . . . .	119
C.2	Optisches Theorem & Unitaritätsbedingung . . . . .	121
C.3	Diffraktogramm & Pattersonfunktion . . . . .	122
<b>D</b>	<b>Einige Eigenschaften Greenscher Funktionen</b>	<b>125</b>
<b>E</b>	<b>Anmerkungen zur effizienten Implementierung des Multislice-Verfahrens</b>	<b>128</b>
<b>F</b>	<b>Schnelle FOURIER-Transformation (FFT) und Antialiasing</b>	<b>141</b>
F.1	Die Schnelle FOURIER-Transformation (FFT) . . . . .	141
F.2	Lage und Orientierung der Koordinatensysteme . . . . .	142
F.3	Schiefwinklige Koordinatensysteme & Geometriekorrektur . . . . .	144
F.4	NYQUIST-Frequenz und Antialiasing . . . . .	145
F.5	Faltungsintegrale und Antialiasing . . . . .	145
F.6	FFT-Implementierungen . . . . .	147
F.7	Anzahl der Rechenoperationen einer FFT . . . . .	152
<b>G</b>	<b>Abkürzungen &amp; nützliche Konstanten</b>	<b>156</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>158</b>

# Einführung

*Sagen Sie etwas, ich möchte es bestreiten. (Lev Davidowitsch Landau)*

Die dynamische Wechselwirkung eines Elektrons mit einem Objekt führt insbesondere im Falle hochaufgelöster elektronenmikroskopischer Bilder sehr schnell zu nicht mehr intuitiv verständlichen Kontrastverteilungen im Bild. Da das Elektron<sup>1</sup> beim Durchqueren des Objektes gewissermaßen die ganze 3-dimensionale Struktur des Objektes sieht, sind die nachfolgend aufgenommenen Bilder keine einfachen 2-dimensionalen geometrischen Projektionen dieser Struktur auf die Bildebene. Diese Bildintensität enthält vielmehr in verwickelter Weise die Information über die 3-dimensionale Struktur des Objektes. Diese ohnehin schon komplizierte Sachlage wird im Durchstrahlungs-Elektronenmikroskop noch weiter durch die Kontrastverzwirbelungen des elektronenoptischen Abbildungssystems mit seinen (unangenehm) hohen Fehlern verschlimmert. Dabei wirken diese beiden Erschwernisse für die Interpretation der Kontrastverteilungen im Bild obendrein noch in nichtlinearer Art und Weise zusammen. Daher ist es in der Elektronenmikroskopie seit langer Zeit üblich, sich einen Überblick über die hier herrschenden Kontrastvariationen mit Hilfe von Programmen zur Bildsimulationen zu verschaffen [4], um zu sehen, ob sich damit die Interpretation der Kontrastverteilungen im Bild reproduzieren lassen. Von den dabei für die Simulation des Objektanteils herangezogenen Methoden hat sich das sogenannte *Multislice-Verfahren* [21][61] als das flexibelste Verfahren erwiesen. Dieses Verfahren hat große Ähnlichkeit mit der Methode der Indivisibeln aus der Zeit vor Auffindung der Integralrechnung. Man denkt sich dabei das Objekt in einzelne Scheibchen unterteilt. Denn für ein hinreichend dünnes Scheibchen läßt sich ein berechenbarer Ausdruck auffinden, der die Wechselwirkung des Elektrons mit einem solchen Objektscheibchen näherungsweise beschreibt. Die Wechselwirkung des Elektrons mit dem ganzen Objekt setzt man dann aus diesen Teilausdrücken zusammen. Würde man hierbei dann zur Grenze verschwindender Scheibchendicke bei konstanter Dicke des Objektes übergehen, hat man das Analogon zur Indivisibelnmethode. In Praxi rechnet man natürlich nur Näherungsergebnisse für eine endliche Dicke der Scheibchen aus.

Diese Bildinterpretation mit Hilfe des Multislice-Verfahrens beschreibt aber die im Durchstrahlungs-Elektronenmikroskop vorliegenden Verhältnisse nur unvollkommen. Diese bekannte Form des Multislice-Verfahrens berücksichtigt nämlich ausschließlich elastische oder kohärente Streuprozesse im Objekt [61][67]. Neben diesen gibt es aber auch noch inkohärente oder inelastische Streuprozesse, die einen zusätzlichen Einfluß auf die Kontrastverteilungen im nachfolgenden Bild oder Beugungsbild des Streuvorganges haben. Es geht in dieser Arbeit daher um die theoretische Beschreibung dieser Streuvorgänge für die Verhältnisse, wie sie im Durchstrahlungs-Elektronenmikroskop typischerweise vorliegen. Neben diesem Gesichtspunkt ist aber fernerhin noch zu beachten, daß das Objekt im Elektronenmikroskop nicht kohärent beleuchtet wird. Es wird sich zeigen, daß beide Situationen mit Hilfe der Dichtematrix für die Verteilung der Koordinaten des Elektrons beschrieben werden können. Die Beschreibung der Eigenschaften des Elektrons mit Hilfe einer Dichtematrix bringt dabei den fundamentalen Punkt der Quantenmechanik zum Ausdruck, daß dem Elektron nach der Wechselwirkung mit dem Objekt keine eigene Wellenfunktion mehr zukommt. Die adäquate Berücksichtigung dieses Umstandes ergibt in der Folge die gesuchte Verallgemeinerung des Multislice-Verfahrens für kohärente Streuprozesse auf inkohärente Streuprozesse.

---

<sup>1</sup>Zwecks bequemer Ausdrucksweise werde ich im folgenden kurz von „dem Elektron“ reden. Mit dieser Ausdrucksweise ist das mit dem Objekt wechselwirkende Elektron gemeint.

Angesichts der Länge die die vorliegende Abhandlung hat, will ich dem guten Beispiel Des-Cartes im *Discours de la Methode* folgen, und nun eine Übersicht über die folgende Arbeit geben.

Diese Schrift ist nicht zuletzt auch deswegen so lang ausgefallen, weil sie einen doppelten Zweck verfolgt. Neben ihrer Hauptfunktion soll sie zu einem erheblichen Anteil auch der Dokumentation des dieser Schrift zugrunde liegenden Simulationsprogrammes **YaMS** (Yet another MultiSlice)<sup>2</sup> dienen. Zum anderen habe ich auch die diesem zugrunde liegenden theoretischen Gesichtspunkte ausführlicher als unbedingt notwendig erörtert, da sie bei zu knapper Darstellung leicht mißverstanden werden können.

Die drei mit *Grundgleichungen der Elektronenstreuung I bis III* betitelten Kapitel sind ein dreifacher Umlauf um das Problem. Zur Übersicht reicht es daher aus, nach dem Kapitel 1 gleich zum zentralen Kapitel 4 zu springen. Zu diesem Kapitel gehört auch der Anhang B, in dem die im Kapitel 4 abgeleiteten Mittelwerte im Gegensatz zu den Darstellungen in [28][91] zum ersten Mal für einen Festkörper abgeleitet werden. Nicht zuletzt dies machte es erforderlich, im Vergleich zu [28][90], die Ansprüche an die Berechnung der Mittelwerte auf ein bescheideneres Maß zurück zu schrauben: Anstatt einen anspruchsvollen thermischen Mittelwert zu berechnen, werde ich mich auf einen Mittelwert über den Grundzustand des Objektes beschränken. Allerdings werde ich im Unterschied zu den Autoren in [28][90][91] diesen nicht gleich in der Näherung, die einen Festkörper durch ein Gas von unabhängigen Atomen darstellt, berechnen. Das erfolgt erst hinterher im Rahmen der *harmonischen Näherung*. Der Vorteil, den man davon hat, die Dinge von dieser Seite her aufzuziehen, ist der, daß sich einem hierbei ein gangbarer Weg aufzeichnet, wie man die bisher zur Berechnung verwendeten einfachen Modelle zumindest für die Beschreibung der elastischen und der thermisch diffusen Streuung von Elektronen erheblich verbessern kann. Ferner wird sich dabei auch herausstellen, daß man bei der Berechnung der Mittelwerte für die inelastische Elektronenstreuung bislang einen Fehler gemacht hat. Was es hierbei mit der *harmonischen Näherung* und auch mit der im Anhang B erwähnten *adiabatischen Näherung* auf sich hat, wird im Kapitel 3 auseinandergesetzt. Aus dieser Rechnung erhellt sich einem dann auch der Grund dafür, warum die bisher tradierte Art die Mittelwerte zu berechnen, nicht auf der *adiabatischen Näherung* der Zustandsfunktionen des Festkörpers basiert, wie die bisherige Meinung war.

Nach diesem zentralen Teil der Darstellung kann man sich dem Kapitel 5 zuwenden. Hier wird die Propagation einer Elektronenwelle durch das Abbildungssystem insoweit beschrieben, als sie für das Verständnis dieses Teils des Simulationsprogrammes wesentlich ist.

Ansonsten mag man für eine erste Übersicht über das Werk noch die ersten fünf Abschnitte aus dem Kapitel 6 und das Kapitel 7 heranziehen.

Das Kapitel 2, der erste Umlauf um das Problem, ist eine kleine Ausgestaltung der Darstellung des Themas, wie sie etwa in den Artikeln von H. Rose [106][107] beschrieben wird. Diese Darstellung basiert auf den exakten Streuamplituden. Ich führe das nur bis zur Ableitung der Unitaritätsbedingung für die Streuamplituden und des Optischen Theorems aus, da diese eine notwendige Bedingung darstellen, die man für eine numerische Behandlung der Elektronenstreuung und damit der Bildsimulation beachten muß. Zwar könnte man jetzt wie in [106][107] damit fortfahren und versuchen, die Bildentstehung im Durchstrahlungs-Elektronenmikroskop nur durch diese Streuamplituden zu beschreiben. Da ich aber hier nicht bloß vorhabe, zu beschreiben, was man prinzipiell dafür tun müßte, sondern wie etwas wirklich numerisch ausgerechnet werden kann, sehe ich mir im Kapi-

---

<sup>2</sup>Der Name ist analog dem Installationsprogramm **YaST** (Yet another SetupTool) der SuSE-Linux Distribution gebildet. Ursprünglich war er nur als kleiner Scherz gedacht, bis einem ein besserer Name einfällt - irgendeinen Namen muß man dem Kinde ja schließlich geben. Aber wie das mit Provisorien halt so ist . . .

tel 3, im zweiten Umlauf um das Problem, erst einmal an, wie es mit der für eine solche Beschreibung durch die exakten Streuamplituden notwendigen Voraussetzung aussieht, im Besitz eines vollständigen Satzes von Zustandsfunktionen für das Objekt zu sein. Ich werde dabei natürlich auch nicht in der Lage sein, die sich bei einer solchen, auf Wellenfunktionen beruhenden Darstellung ergebenden komplizierten und miteinander gekoppelten Bewegungsgleichungen zu lösen. Wir können uns also gleich denken, daß dieses Kapitel mit einer Kapitulationserklärung enden wird. Trotzdem hat dieses Kapitel, wie oben erwähnt, einen positiven Nährwert. Ein kleines Teilergebnis wird uns bei der Berechnung der im darauffolgendem Kapitel, dem dritten und letzten Umlauf, abgeleiteten zu berechnenden Mittelwerte noch gute Dienste leisten.

Die übrigen Abschnitte gehen vorwiegend auf einige der Besonderheiten des Bildsimulationsprogrammes **YaMS** ein. Ferner erwähne ich dort auch einige Dinge die von dem Buch von Kirkland<sup>3</sup> *Advanced Computing in Electron Microscopy* abweichen. Für alle übrigen die praktische Durchführung der Bildsimulation betreffenden Aspekte empfehle ich dem Leser aber dieses Buch. Kirkland hat hier nämlich die verdienstvolle Aufgabe übernommen, diese in zahllosen Artikeln weit verstreute Materie zusammenzutragen und in verständlicher Form darzustellen. Die Anhänge E und F sowie das Kapitel 6.8 dienen daher mehr dem Ziel der Dokumentation dieses Bildsimulationsprogrammes und können für einen ersten Überblick übergangen werden.

Im Anhang G sind einige der verwendeten Bezeichnungen für den Leser zusammengestellt. Im übrigen ist die verwendete Notation weitgehend ähnlich derjenigen im Buch von Landau & Lifschitz [70].

---

<sup>3</sup>Um Mißverständnisse zu vermeiden: In seinem Buch behandelt Kirkland ausschließlich den Teil der Bildsimulation für das Elektronenmikroskop, der auf elastischer Elektronenstreuung beruht. Wie man das Problem der inelastischen Elektronenstreuung behandelt, wird dort nicht dargestellt.

# Kapitel 1

## Dichtematrix

*[...] Wenn wir Grund zu der Annahme haben, daß die Phänomene, die wir beobachten können, nur ein kleiner Teil dessen sind, was sich in Wirklichkeit in dem System vollzieht, dann lautet die Frage, die wir uns stellen müssen [...]: Was ist die allgemeinste Spezifikation eines bestehenden materiellen Systems unter der Bedingung, daß die Bewegungen derjenigen Teile des Systems, die wir beobachten können, so sind, wie wir sie vorfinden?*

*(J.C. Maxwell)*

Gemäß den Prinzipien der Quantenmechanik kann der Zustand eines Systems, das Teil eines größeren abgeschlossenen Systems ist i. allg. nicht durch eine Wellenfunktion beschrieben werden. Es ist lediglich möglich, dem abgeschlossenen Gesamtsystem eine Wellenfunktion  $\Psi(\mathbf{R}, \mathbf{r})$  zuzuordnen. Dabei steht hier  $\mathbf{r}$  für die Gesamtheit der Koordinaten des betrachteten Teilsystems und  $\mathbf{R}$  steht für die restlichen Koordinaten des abgeschlossenen Gesamtsystems. Hierbei ist der Umstand zu beachten, daß die Zustandsfunktion des Gesamtsystems i. allg. keineswegs in ein einfaches Produkt zweier Funktionen zerfällt, die nur je von den Koordinaten der Teile abhängen.

Die Antwort, die uns die Quantenmechanik in dieser Situation auf die obige Frage Maxwell's gibt, lautet nun wie folgt:

Wenn  $f$  eine physikalische Größe (Observable) des streuenden Teilsystems bedeutet, sodaß der dieser physikalische Größe zugeordnete Operator  $\hat{f}$  nur auf die Koordinaten  $\mathbf{r}$  einwirkt, so ist der folgende Ausdruck für den Mittelwert dieser Größe zu bilden:

$$\bar{f} = \int \Psi^*(\mathbf{R}, \mathbf{r}) \hat{f} \Psi(\mathbf{R}, \mathbf{r}) dV_R dV_r. \quad (1.1)$$

Man hat also über alle nicht beobachteten Koordinaten quantenmechanisch zu mitteln. Oder anders formuliert:<sup>1</sup>

Wir müssen über sämtliche nichtbeobachteten Zustände „aufsummieren“.

Hier erweist es sich nun als für die Rechnung von Vorteil, eine Funktion  $\varrho(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$  durch die folgende Definition einzuführen [70] [133]:<sup>2</sup>

$$\varrho(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \int \Psi^*(\mathbf{R}, \mathbf{r}') \Psi(\mathbf{R}, \mathbf{r}) dV_R. \quad (1.2)$$

---

<sup>1</sup>Man vergleiche dies mit: *Der Quantenzustand des Universums*; Kapitel 11 in: M. Gell-Mann, *Das Quark und der Jaguar*, Serie Piper, München 1996.

<sup>2</sup>Man beachte dabei die inverse Reihenfolge der Argumente  $\mathbf{r}$  und  $\mathbf{r}'$ .



Die so definierte Funktion heit *Dichtematrix* des Teilsystems. Sie ergibt die allgemeinste Form der quantenmechanischen Beschreibung von Systemen, und enthlt die Beschreibung mittels einer Wellenfunktion als den Spezialfall  $\varrho(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \Psi^*(\mathbf{r}') \Psi(\mathbf{r})$ . Bei der Beschreibung eines Systems mit Hilfe der Dichtematrix bleiben die Phasenbeziehungen zwischen den beiden eingehenden Wellenfunktionen erhalten. Diese Beschreibung mit Hilfe einer *Dichtematrix* ist hier eigentlich auch nichts, was man zur Quantenmechanik hinzufgen mu. Sie bringt lediglich den von Sommerfeld betonten Umstand klar zum Ausdruck, da es nicht blo eine SCHRDINGER-Gleichung gibt, sondern deren zwei. Die zweite ist die zur ersten adjungierte SCHRDINGER-Gleichung, und so ist denn auch hier  $\Psi^*(\mathbf{R}', \mathbf{r}')$  als deren Lsung aufzufassen [119].<sup>3</sup> Es wird sich daher in charakteristischer Weise bei den zu ziehenden physikalischen Schlssen ein solches Produkt  $\Psi^*(\mathbf{R}', \mathbf{r}') \cdot \Psi(\mathbf{R}, \mathbf{r})$  einstellen, und es erscheint dann wohl auch zweckmig, diesem Kind einen eigenen Namen zu geben.

Der obige Mittelwert  $\bar{f}$  kann dann mit Hilfe dieser Dichtematrix folgendermaen geschrieben werden:

$$\bar{f} = \int \hat{f} \varrho(\mathbf{r}, \mathbf{r}')|_{\mathbf{r}'=\mathbf{r}} dV_r = \int \Psi^*(\mathbf{R}, \mathbf{r}) \hat{f} \Psi(\mathbf{R}, \mathbf{r}) dV_R dV_r, \quad (1.3)$$

worin der Operator  $\hat{f}$  nur auf die Koordinaten  $\mathbf{r}$  wirkt. Nach Anwendung des Operators ist dann  $\mathbf{r}' = \mathbf{r}$  zu setzen und die Integration durchzufhren. Man bemerke, da hierin keine Willkr liegt. Vielmehr ist die Unterscheidung der Koordinaten  $\mathbf{r}$  und  $\mathbf{r}'$  eine mathematische Notwendigkeit fr die Mglichkeit der Einfhrung der Dichtematrix (1.2). Man mu dabei nmlich verhindern, da der auf die Koordinaten  $\mathbf{r}$  einwirkende Operator  $\hat{f}$  auf beide Zustandsfunktionen in der Dichtematrix (1.2) wirkt.

Die physikalische Megre, die uns im Rahmen der Streutheorie schlielich interessiert, ist die Wahrscheinlichkeitsverteilung fr die Koordinaten des streuenden Teilsystems, kurz: die (Bild-) Intensitt  $I(\mathbf{r})$ . Diese ist nun offensichtlich gleich den Diagonalelementen der Dichtematrix in der Ortsdarstellung:

$$I(\mathbf{r}) = \varrho(\mathbf{r}, \mathbf{r}' = \mathbf{r}). \quad (1.4)$$

- Die Diagonalelemente der Dichtematrix in der Ortsdarstellung geben die gesuchte Wahrscheinlichkeitsverteilung der Koordinaten des streuenden Teilsystems.

Man bentigt allerdings alle diese Diagonalelemente. Entweder, wie hier, in der Ortsdarstellung als Bild  $I(\mathbf{r})$  und/oder in der Impulsdarstellung als Beugungsbild  $I(\mathbf{q})$ , und nicht blo deren Summe (= Spur). Diese ist in der Streutheorie immer gleich 1,<sup>4</sup> was bedeutet, da keine Intensitt spurlos verschwindet, d. h. da die Gesamtenergie erhalten bleibt, wie dies fr ein von der Umgebung abgeschlossenen System auch sein mu. Ferner beachte man, da sich das Beugungsbild  $I(\mathbf{q})$  **nicht** einfach durch FOURIER-Transformation aus dem Bild  $I(\mathbf{r})$  berechnen lt. Das ist aus der Definition unmittelbar ersichtlich. Denn die Dichtematrix in der Impulsdarstellung

$$\varrho(\mathbf{q}, \mathbf{q}') = \hat{\mathcal{F}} \hat{\mathcal{F}}'^* \varrho(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \int \Psi^*(\mathbf{R}, \mathbf{q}') \Psi(\mathbf{R}, \mathbf{q}) dV_R, \quad (1.5)$$

<sup>3</sup>Kap. I. §6.D ... Wir werden [ ... ] sehen [nmlich in §7], da diese konjugierte Gleichung mit der ursprnglichen in einem engen analytischen Zusammenhange steht und da alle physikalischen Schlsse, die wir aus einer der beiden Wellengleichungen ziehen knnen, auch aus der anderen folgen. Worauf es bei diesen Schlssen ankommt, ist nicht die einzelne Wellengleichung oder die einzelne Wellenfunktion, sondern das Gleichungspaar (12a,b) [die beiden SCHRDINGER-Gleichungen] und das Funktionenpaar  $(u, v)$  [deren Lsungen].

<sup>4</sup>Jedenfalls sollte das bei einer konsistenten Beschreibung des Streuvorgangs so sein. Darauf wird im folgenden im nchsten Kapitel im Zusammenhang mit der Unitarittsrelation fr die Streuamplitude und dem Optischen Theorem noch eingegangen.

ist offensichtlich nicht einfach gleich der FOURIER-Transformierten der Diagonalelemente der Dichtematrix:

$$\begin{aligned}
 \mathcal{D}(\mathbf{q}) = \hat{\mathcal{F}}\varrho(\mathbf{r}, \mathbf{r}' = \mathbf{r}) &= \hat{\mathcal{F}} \int \Psi^*(\mathbf{R}, \mathbf{r}) \Psi(\mathbf{R}, \mathbf{r}) dV_R \\
 &= \int dV_R \iint (2\pi)^3 \delta(\mathbf{q} - \mathbf{k} + \mathbf{k}') \Psi^*(\mathbf{R}, \mathbf{k}') \Psi(\mathbf{R}, \mathbf{k}) \frac{dV_{k'}}{(2\pi)^3} \frac{dV_k}{(2\pi)^3} \\
 &= \iint \Psi^*(\mathbf{R}, \mathbf{q} - \mathbf{k}) \Psi(\mathbf{R}, \mathbf{k}) dV_R \frac{dV_k}{(2\pi)^3} \quad (1.6)
 \end{aligned}$$

$$= \iint \Psi^*(\mathbf{R}, \mathbf{k}) \Psi(\mathbf{R}, \mathbf{q} + \mathbf{k}) dV_R \frac{dV_k}{(2\pi)^3} . \quad (1.7)$$

Diese Funktion, also die FOURIER-Transformierte der Bildintensität  $I(\mathbf{r})$ , wollen wir im weiteren mit *Diffraktogramm* bezeichnen. Ferner wird die FOURIER-Transformierte der Beugungsbildintensität  $I(\mathbf{q})$  als *Pattersonfunktion*  $\mathcal{P}(\mathbf{r})$  bezeichnet.

Etwas lax ausgedrückt: Die  $N$  Diagonalelemente reichen nicht aus, um die  $N^2$  Elemente der Dichtematrix vollständig zu bestimmen. D. h. man benötigt im Rahmen der Streutheorie die Kenntnis der vollen Dichtematrix in der Orts- oder Impulsdarstellung.

Die obige, nicht zeitabhängige Formulierung der Dichtematrix kann man natürlich leicht auf den Fall der Zeitabhängigkeit erweitern. Da wir uns aber hier auf stationäre Vorgänge beschränken wollen, und wir im folgenden auch sehen werden, daß wir eine zeitabhängige Formulierung nie wirklich brauchen werden, werde ich darauf verzichten. Aber man muß sich gegebenenfalls an diese Vereinfachung erinnern.<sup>5</sup>

Mehr als das hierher gesetzte brauchen wir im folgenden über die Dichtematrix und ihre Bedeutung nicht zu wissen - außer, daß wir dieses „Tierchen“ für unsere Zwecke in der Ortsdarstellung benötigen - dem ungeliebten Kind der statistischen Physik.

In den nächsten Kapiteln werden wir nun zusehen, wie wir diese Dichtematrix gewinnen können. Ein Weg, sie zu berechnen, ist anscheinend der, zuzusehen, ob wir etwas über den wesentlichen Bestandteil  $\Psi(\mathbf{R}, \mathbf{r})$  der Dichtematrix herausfinden können. Das wird das Thema der nächsten Kapitel sein.

*Dies ist der erste Teil dessen, was ich hier darzulegen hatte . . .*

*(DesCartes, Geometrie)*

---

<sup>5</sup>„Da uns eine solche komplizierte Darstellung völlig ungerechtfertigt erscheint, haben wir uns umgekehrt um denkbar mögliche Einfachheit bemüht und haben vielfach auf die Originalarbeiten zurückgegriffen“ [70].

# Kapitel 2

## Grundgleichungen der Elektronenstreuung I

### 2.1 Schwerpunkt- und Laborsystem

Die Rechnungen in der Streutheorie werden üblicherweise im Schwerpunktsystem durchgeführt. Hier haben das streuende Teilchen und das Objekt vor der Streuung einander entgegengerichtet gleiche Impulse. Im Falle elastischer Streuung sind dann infolge des Impulserhaltungssatzes auch die Impulse beider Teile nach der Streuung dem Betrag nach einander gleich und entgegengesetzt gerichtet, und infolge des Energieerhaltungssatzes bleiben ihre absoluten Größen erhalten. D. h. die elastische Streuwelle hat dem Betrage nach denselben Wert des Wellenvektors wie die einlaufende (ebene) Welle. Dem ist nicht mehr so im Laborsystem, in dem das Objekt anfänglich ruht. Hier ist der Betrag des Wellenvektors der gestreuten Welle kleiner als der Betrag des Wellenvektors der einlaufenden Welle. Wegen der außerordentlich überwiegenden Masse des Objektes gegenüber der Masse des streuenden Teilchens – hier ist das ein Elektron – ist diese Frequenzverschiebung der Streuwelle außerordentlich klein, da sowohl nach der nichtrelativistischen, als auch nach der relativistischen Stoßmechanik ein leichtes Teilchen dem schweren nur einen geringen Teil seiner Bewegungsenergie abgeben kann. In der relativistischen Stoßmechanik wäre das erst dann anders, wenn die Energie des Teilchens die Größenordnung der Ruhenergie des Objekts bzw. eines Objektatoms erreicht. Das ist im Elektronenmikroskop nicht der Fall.

Aufgrund dieses Unterschieds zwischen Schwerpunkt- und Laborsystem ist es also eigentlich nicht korrekt zu sagen, daß sich bei elastischer Streuung die Energie der Streuwelle nicht ändert, und deshalb diese Welle mit der einlaufenden kohärent ist bzw. bleibt. Das ist nur im Schwerpunktsystem so. Die korrekte Definition von elastischer Streuung ist vielmehr die folgende:

- Mit elastischer Streuung bezeichnet man einen Streuvorgang, bei dem sich die inneren Quantenzustände des Systems – Objekt und Teilchen – **nicht** ändern.

Und daher lautet die Definition für inelastischer Streuung entsprechend:

- Mit inelastischer Streuung bezeichnet man einen Streuvorgang, bei dem sich die inneren Quantenzustände des Systems ändern.

Im Schwerpunktsystem wird also die elastische und auch die inelastische Streuung an einem Atom mit festgehaltener Kernposition beschrieben. Genau besehen ist dieser feste Ort der

Ort des Schwerpunktes des Systems Elektron-Atom. Die Orte der Kerne spielen dabei in der Schrödingergleichung des Streuproblems lediglich die Rolle von Parametern, die dann zunächst auch als solche in der Lösung des Streuproblems stehen bleiben. Durch geeignete Wahl dieser Parameter modelliert man dann die Eigenschaften des Objektes, also: Atom, Molekül, gasförmig, flüssig, amorph, kristallin, ...

Aufgrund der Nullpunktsbewegung bzw. der thermischen Bewegung der Atome sind in realen Objekten die Kernpositionen andauernden Fluktuationen unterworfen. Betrachtet man diese vollständige Situation, so lassen sich die Kernpositionen nicht mehr als bloße Parameter behandeln, denn nun überlagern sich die elektronischen Anregungen und die thermisch bedingten Vibrationen der Atome. In den Energiespektren des Objektes sitzen auf den elektronischen Niveaus als Feinstruktur die Vibrationsniveaus. Obendrein hat diese thermische „Wackelei“ eine Rückwirkung auf die elektronischen Zustände des Objektes: Wenn man ein Stück Eisen erhitzt, glüht es irgendwann rötlich, d. h. also, wenn man ein Atom nur heftig genug schüttelt, regt man seine Elektronenhülle dazu an, Photonen zu emittieren.

Im Laborsystem läßt der Anfangszustand des Systems als ein Produkt zweier unabhängiger Teilsysteme darstellen

$$\Psi_{<}(X, x, \mathbf{r}) = \Upsilon_0(\mathbf{r}) \cdot \Psi_0(X, x). \quad (2.1)$$

Darin bedeutet  $\Upsilon_0$  den Anfangszustand des einlaufenden Elektrons und  $\Psi_0$  den des Objektes und es werden hier und im folgendem die dreidimensionalen Ortskoordinaten des einlaufenden Elektrons der Ruhmasse  $m$  mit  $\mathbf{r}$  bezeichnet. Bei den sich auf das Objekt beziehenden Koordinaten wurde hier zwischen den Koordinaten der Elektronen  $x$  und denen der Kerne  $X$  unterschieden. Diese beiden Koordinatentypen werden wir in diesem Kapitel einfach kurz mit  $\mathbf{R}$  bezeichnen, da es uns hier auf eine Unterscheidung beider voneinander vorläufig nicht ankommt. Im nächsten Kapitel wird aber zwischen beiden unterschieden werden.

Der Ort des Schwerpunktes  $\bar{X}_0$  der Ruhelagen  $X_0$  der Atomkerne wird dabei aufgrund der Anzahl der im Objekt gebundenen Atome und der gegenüber einem Elektron großen Masse der Atomkerne, ein quantenmechanisch scharf definierter Ort sein. Dieser Umstand sorgt dann dafür, daß die Phasenbeziehungen der an den verschiedenen beweglichen Atome des Objektes gestreuten Streuwellen nicht verwischt werden. Man wird also zweckmäßigerweise den Schwerpunkt  $\bar{X}_0$  des Objektes zum Ursprung des Koordinatensystems machen.

## 2.2 Allgemeine Streutheorie

*Die Mathematik ist eine Art Spielzeug, welches die Natur uns zuwarf, um uns in diesem Jammertal zu trösten und zu unterhalten.*

(D'Alembert)

Zur Ableitung der Gleichungen, die die Streuung des Elektrons am Objekt beschreiben, gehen wir von der SCHRÖDINGER-Gleichung für das Gesamtsystems aus:

$$\left\{ \hat{T}_e + U(\mathbf{R}, \mathbf{r}) + \hat{H}_O \right\} \Psi(\mathbf{R}, \mathbf{r}) = E \Psi(\mathbf{R}, \mathbf{r}). \quad (2.2)$$

Darin sind  $\hat{T}_e$  und  $\hat{H}_O$  die HAMILTON-Operatoren des einfallenden Elektrons und des Objektes und  $U$  die Wechselwirkung dieser beiden Teilsysteme miteinander. Nehmen wir an,

wir hätten einen vollständigen Satz von Lösungen für das Objektproblem

$$\hat{H}_O \Psi_n(\mathbf{R}) = E_n \Psi_n(\mathbf{R}), \quad (2.3)$$

dann kann man die Wellenfunktion des Gesamtsystems in eine Reihe nach diesen Funktionen entwickeln:

$$\Psi(\mathbf{R}, \mathbf{r}) = \sum_n \psi_n(\mathbf{r}) \Psi_n(\mathbf{R}). \quad (2.4)$$

Diese Entwicklung ist wie gesagt nur möglich, wenn wir für das Objektproblem (2.3) einen vollständigen Satz von Lösungen besitzen; ein sogenanntes VONS.<sup>1</sup> Im nächsten Kapitel werden wir uns davon überzeugen, daß das ein ganz aussichtsloses Unterfangen ist. Insofern sind die folgenden Ausführungen zwar formal richtig, aber ansonsten von ähnlicher Natur wie Kepler's Weltharmonik.

Wenn wir hier für's erste derlei Skrupel negieren, uns vielmehr an das Motto dieses Kapitels halten, in diesem Procedere fortfahren und den Ansatz (2.4) in (2.2) einsetzen, erhalten wir die Schrödinger-Gleichung des Streuproblems im Ortsraum

$$\{\Delta + \mathbf{k}_n^2\} \psi_n(\mathbf{r}) = \frac{2m\gamma}{\hbar^2} \sum_m U_{nm}(\mathbf{r}) \psi_m(\mathbf{r}), \quad (2.5)$$

wobei

$$U_{nm}(\mathbf{r}) = \int \Psi_n^*(\mathbf{R}) U(\mathbf{R}, \mathbf{r}) \Psi_m(\mathbf{R}) dV_R \quad (2.6)$$

und  $\gamma$  das Verhältnis der Gesamtenergie zur Ruhenergie des einfallenden Elektrons ist. Ferner ist darin der Betrag  $k_n = |\mathbf{k}_n|$  des Wellenvektors des Elektrons nach der Streuung durch

$$k_n = w(\epsilon_{n0}) \cdot k_0 \quad (2.7)$$

gegeben, wobei die vom Energieverlust  $\epsilon_{n0} = E_n - E_0$  des Elektrons abhängige Funktion  $w$  im Anhang A explizit angegeben wird. Bezüglich der Problematik der Verwendung der relativistischen Kinematik in der nichtrelativistischen SCHRÖDINGER-Gleichung siehe [5][114] und auch [38][39]. Wir bemerken auch gleich hier, daß es uns in der Folge für die Anwendung auf die Verhältnisse in der Durchstrahl-Elektronenmikroskopie eigentlich ausschließlich auf Klein(st)winkelstreuung ankommt. Wir brauchen deshalb auf Austauschwechselwirkungseffekte zwischen dem Elektron und den Elektronen des Objektes durchweg keine Rücksicht zu nehmen.

Neben dieser SCHRÖDINGER-Gleichung des Streuproblems im Ortsraum gibt es auch eine analoge Gleichung im Impulsraum. Zur Ableitung dieser Gleichung folgen wir dem Rechengang in [70] und verallgemeinern diesen dabei auf den Fall der inelastischen Streuung. Man transformiert die SCHRÖDINGER-Gleichung des Streuproblems in die Impulsdarstellung dadurch, daß man von den ortsabhängigen Wellenfunktionen zu den impulsabhängigen übergeht, d. h. zu den FOURIER-Transformierten<sup>2</sup>

$$\psi_n(\mathbf{q}) = \int \psi_n(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{q}\mathbf{r}} dV_r. \quad (2.8)$$

<sup>1</sup>Vgl. dazu die Fußnote 1 auf Seite 24.

<sup>2</sup>Es zeigt sich, daß diese Vorzeichenkonvention der FOURIER-Transformation für das folgende bequemer ist als die umgekehrte Möglichkeit.

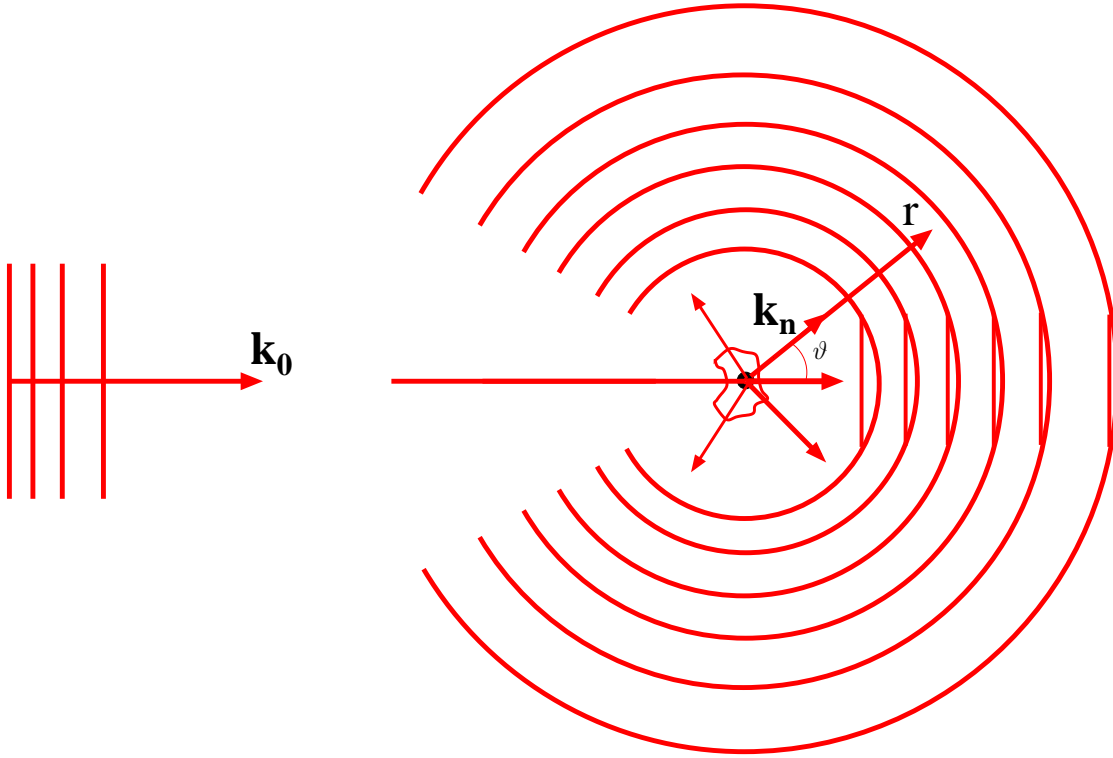


Abbildung 2.1: Geometrische Verhältnisse bei der Streuung. In Vorwärtsstreurichtung interferiert die am Objekt gestreute Streuwelle, die sich in großen Entfernungen kugelförmig ausbreitet, mit der weiterlaufenden einfallenden ebenen Welle mit dem Wellenvektor  $\mathbf{k}_0$ . Der eingeschlossene Winkel  $\vartheta$  zwischen  $\mathbf{k}_n$  und  $\mathbf{k}_0$  ist der Streuwinkel.

Aufgrund des Faltungstheorems für die FOURIER-Transformation lautet damit die SCHRÖDINGER-Gleichung des Streuproblems in der Impulsdarstellung

$$\{\mathbf{k}_n^2 - \mathbf{q}^2\} \psi_n(\mathbf{q}) = \frac{2m\gamma}{\hbar^2} \sum_m \int U_{nm}(\mathbf{q} - \mathbf{q}') \psi_m(\mathbf{q}') \frac{dV_{q'}}{(2\pi)^3}, \quad (2.9)$$

wobei  $U_{nm}(\mathbf{q})$  die FOURIER-Transformierte des Feldes  $U_{nm}(\mathbf{r})$  ist. Im Gegensatz zur Differentialgleichung (2.5) ist dies eine Integralgleichung.

Durch das unendliche System der gekoppelten Differentialgleichungen (2.5) oder Integralgleichungen (2.8) werden die elastischen und inelastischen Streuprozesse und deren wechselseitigen Rückwirkungen aufeinander beschrieben. Diese Rückkopplung bewirkt, daß z. B. die elastische Streuwelle  $\psi_0$  bei Vorhandensein inelastischer Streuprozesse eine andere Form hat, als wenn nur elastische Streuprozesse möglich sind. Daher ist es dann auch keine Überraschung, daß in der elastischen Streuamplitude auch Informationen über die inelastischen Streuprozesse enthalten sind. Diese selbstkonsistente Kopplung der elastischen Streuamplitude mit den inelastischen Streuamplituden findet in der Unitaritätsrelation der elastischen Streuamplitude und dem Optischen Theorem einen adäquaten mathematischen Ausdruck. Darauf werden wir im Abschnitt 2.9 noch zurückkommen.

Man kann aus dem unendlichen System der gekoppelten Differentialgleichungen (2.5) ferner auch folgendes ablesen: Es ist es zwar möglich, daß elastische Streuung ohne inelastische Streuung vorkommt, aber das Umgekehrte ist unmöglich. Inelastische Streuung kann es nur dann geben, wenn gleichzeitig auch elastische Streuung stattfindet. Wenn man

nämlich die Diagonalelemente  $U_{nn}$  der Summe herauszieht und auf der linken Seite anschreibt

$$\left\{ \Delta + k_n^2 - \frac{2m\gamma}{\hbar^2} U_{nn}(\mathbf{r}) \right\} \psi_n(\mathbf{r}) = \frac{2m\gamma}{\hbar^2} \sum_{m \neq n} U_{nm}(\mathbf{r}) \psi_m(\mathbf{r}),$$

und fordert, daß die linke Seite identisch 0 ist für alle  $n$ , dann verschwindet notwendig auch die rechte Seite, d. h. es findet überhaupt keine Streuung statt, was keine zulässige Lösung für unser Problem darstellt. Wenn aber für irgendein  $n$  die linke Seite von 0 verschieden ist, dann kann die rechte Seite dadurch identisch 0 sein, daß in  $U_{nm}$  alle nichtdiagonalen Elemente identisch 0 sind, d. h. , daß keine inelastische Streuung stattfindet. Die Lösungen der homogenen linken Seite dieser Gleichung geben dann die Lösungen für die elastische Streuung. Es können aber auch einige der Nichtdiagonalelemente von  $U_{nm}$  verschieden von 0 sein. Dann gibt es neben elastischer Streuung auch inelastische Streuung. Also: Inelastische Streuung bedingt gleichzeitige elastische Streuung.

## 2.3 Integralgleichung des Streuproblems im Ortsraum

Die SCHRÖDINGER-Gleichung des Streuproblems im Ortsraum (2.5) kann ebenfalls zu einer Integralgleichung umgeschrieben werden. Bedenkt man, daß es das Charakteristikum eines Streuproblems wie (2.5) ist, daß die Lösungen im ganzen Raum gesucht sind, ohne daß physikalisch vorgegebene Ränder zur Einengung eines endlichen Bereichs führen, und daß die Lösung der analogen inhomogenen Helmholtzschen Wellengleichung

$$\{\Delta + k^2\} \varphi(\mathbf{r}) = -q(\mathbf{r})$$

für diesen Fall durch

$$\varphi(\mathbf{r}) = \varphi^{\text{hom}}(\mathbf{r}) + \int \frac{\exp(ik|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)}{4\pi|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} q(\mathbf{r}') dV_{\mathbf{r}'}$$

gegeben ist, wo  $\varphi^{\text{hom}}$  Lösung der homogenen Gleichung ist, so findet man die dem Differentialgleichungssystem (2.5) zugeordnete Integralgleichung des Streuproblems im Ortsraum

$$\psi_n(\mathbf{r}) = e^{ik_0 \mathbf{r}} \delta_{n0} - \frac{2m\gamma}{\hbar^2} \sum_m \int \frac{\exp(ik_n|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)}{4\pi|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} U_{nm}(\mathbf{r}') \psi_m(\mathbf{r}') dV_{\mathbf{r}'} . \quad (2.10)$$

Das Kronecker-Delta  $\delta_{n0}$  bei der homogenen Lösung trägt der Tatsache Rechnung, daß ohne das die Wechselwirkung beschreibende Feld  $U_{nm}(\mathbf{r})$  die einlaufende Welle ungestört weiterläuft. Für die einlaufende Welle wurde dabei eine ebene Welle angenommen. Der hier mit dem Index 0 bezeichnete Zustand ist der Anfangszustand des Objektes.

Bei dieser Gleichung fällt auf, daß hier offenbar die einlaufende ebene Welle mit gleicher Intensität vor und hinter dem Objekt auftritt. Das ist eigentlich unphysikalisch, ist doch die einlaufende Primärwelle die Quelle für die auslaufenden Kugelwellen. Diese unphysikalische Situation kann man vermeiden, wenn man die obige Gleichung als eine FOURIER-Komponente der FOURIER-Entwicklung einer bündelbegrenzten einfallenden Welle auffaßt [85]. Man müßte daher eigentlich explizite die zeitabhängige Wechselwirkung eines in seiner räumlichen Ausdehnung beschränkten Wellenpaketes mit dem Objekt berechnen. Allerdings interessiert uns am Schluß nur das Verhalten der Streuwellen in unendlicher Entfernung vom Objekt.

## 2.4 Verhalten in unendlicher Entfernung: Streuamplitude

Von den Streulösungen der Integralgleichung (2.10) ist nur ihr asymptotisches Verhalten für  $r \rightarrow \infty$  von Interesse.

Für große  $r$  kann man sich den Umstand zu nutze machen, daß im Integranden die Felder (der abgeschirmten Coulomb-Potentiale)  $U_{nm}(\mathbf{r})$  nur für  $r < a = \text{Max}(a_{nm})$  merklich von Null verschieden sind. Hier bedeuten die  $a_{nm}$  die Reichweiten der Felder  $U_{nm}(\mathbf{r})$ . Das ist in etwa auch der Bereich, in dem die Integration über  $r'$  in (2.10) einen wesentlichen Beitrag zum Integral liefern wird. Daher kann man in Zähler und Nenner der Kugelwelle entwickeln

$$k_n |\mathbf{r} - \mathbf{r}'| = k_n \sqrt{r^2 - 2\mathbf{r}\mathbf{r}' + r'^2} = k_n r - k_n \frac{\mathbf{r}}{r} \mathbf{r}' + \frac{k_n}{2r^3} (\mathbf{r} \times \mathbf{r}')^2 \pm \dots$$

sodaß man folgenden asymptotische Ausdruck für die Kugelwelle bekommt:

$$\frac{\exp(ik_n |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|)}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} = \frac{e^{ik_n r}}{r} \exp\left\{-ik_n \frac{\mathbf{r}}{r} \mathbf{r}'\right\} \cdot \dots$$

In der Phase der Kugelwelle muß man eine Entwicklungsordnung mehr mitnehmen als im Nenner, da der Term  $k_n \mathbf{r}/r \equiv \mathbf{k}_n$  groß ist, und sich die schnellen Oszillationen der Exponentialfunktion mit denen der Streuwelle  $\psi_m(\mathbf{r}')$  aufheben könnten. Das ergibt für große  $r$  mithin

$$\psi_n(\mathbf{r}) = e^{ik_0 r} \delta_{n0} + \sum_m \left\{ -\frac{1}{4\pi} \frac{2m\gamma}{\hbar^2} \int e^{-i\mathbf{k}_n \mathbf{r}'} U_{nm}(\mathbf{r}') \psi_m(\mathbf{r}') dV_{r'} \right\} \frac{e^{ik_n r}}{r}. \quad (2.11)$$

Die Vorfaktoren der auslaufenden Kugelwelle werden als Streuamplituden für den Streuprozess bezeichnet:

$$f_{nm}(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_n) = -\frac{1}{4\pi} \frac{2m\gamma}{\hbar^2} \int e^{-i\mathbf{k}_n \mathbf{r}'} U_{nm}(\mathbf{r}') \psi_m(\mathbf{r}') dV_{r'}. \quad (2.12)$$

Verwenden wir ferner die Abkürzung

$$f_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_n) = \sum_m f_{nm}(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_n), \quad (2.13)$$

so lautet die asymptotische Form der Streuwellen

$$\psi_n(\mathbf{r}) = e^{ik_0 r} \delta_{n0} + f_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_n) \frac{e^{ik_n r}}{r}. \quad (2.14)$$

Die Bezeichnungsweise  $f_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_n)$  für die Streuamplitude bringt den Umstand zum Ausdruck, daß sie die Amplitude für eine Streuung eines Teilchens aus einer Richtung  $\mathbf{k}_0$  zu einer Richtung  $\mathbf{k}_n$  angeben. Diese Amplitude hängt im allgemeinen nicht bloß von dem Winkel zwischen diesen beiden Richtungen ab. Sie hängt implizit von  $\mathbf{k}_0$  ab, da die  $\psi_n(\mathbf{r})$  von diesem Vektor abhängen. Der Term  $f_0(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}/r)$  ist darin die elastische Streuamplitude. Bei dieser muß man also beachten, daß die Richtung des finalen Wellenvektors  $\mathbf{k}_n$  für  $n = 0$  im allgemeinen verschieden von der des initialen Wellenvektors  $\mathbf{k}_0$  ist.



Bezüglich der Frage, wie groß der Abstand  $r$  von dem streuenden Objekt sein muß, damit die streuenden Wellen ihre asymptotische Form angenommen haben, kann man die entsprechenden Bedingungen der geometrischen Optik hierfür nicht unbedingt übertragen. Die oben eingeführte Reichweite  $a$  des Feldes ist hier, im Gegensatz beispielsweise zu einem festen Durchmesser  $d$  eines streuenden Objektes in der geometrischen Optik, keine feste Konstante. Vielmehr ist z. B. die Elektronenwolke eines Atoms ein unscharf definierter Streuer mit variablem Brechungs- und Beugungsvermögen [29][119].

## 2.5 Streuamplitude in der Impulsdarstellung

Die Integralgleichung des Streuproblems im Ortsraum (2.10) und die Schrödinger-Gleichung des Streuproblems in der Impulsdarstellung (2.9) müssen natürlich miteinander verträglich sein. Dem Rechengang aus [70] folgend, schreiben wir die Gleichung (2.10) in der Form

$$\psi_n(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}} \delta_{n0} + \chi_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{r}). \quad (2.15)$$

Die Funktion  $\chi_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{r})$  geht asymptotisch in die auslaufende Kugelwelle von Formel (2.14) über. Wir setzen die FOURIER-Transformierte von (2.15)

$$\psi_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{q}) = (2\pi)^3 \delta(\mathbf{q} - \mathbf{k}_0) \delta_{n0} + \chi_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{q}) \quad (2.16)$$

in die Gleichung (2.9) ein. Das ergibt

$$\frac{\hbar^2}{2m\gamma} \{ \mathbf{k}_n^2 - \mathbf{q}^2 \} \chi_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{q}) = U_{n0}(\mathbf{q} - \mathbf{k}_0) + \sum_m \int U_{nm}(\mathbf{q} - \mathbf{q}') \chi_m(\mathbf{k}_0, \mathbf{q}') \frac{dV_{q'}}{(2\pi)^3}.$$

Ersetzt man darin nun die unbekannte singuläre Funktion  $\chi_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{q})$  durch eine andere unbekannte reguläre Funktion gemäß der Definition

$$\chi_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{q}) = \frac{2m\gamma}{\hbar^2} \frac{F_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{q})}{\mathbf{q}^2 - \mathbf{k}_n^2 - i0}, \quad (2.17)$$

so wird in der Gleichung deren Singularität bei  $q^2 = k_n^2$  beseitigt. Damit finden wir

$$F_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{q}) = -U_{n0}(\mathbf{q} - \mathbf{k}_0) - \frac{2m\gamma}{\hbar^2} \sum_m \int \frac{U_{nm}(\mathbf{q} - \mathbf{q}') F_m(\mathbf{k}_0, \mathbf{q}')}{\mathbf{q}'^2 - \mathbf{k}_m^2 - i0} \frac{dV_{q'}}{(2\pi)^3}. \quad (2.18)$$

Das ist eine Integralgleichung für die unbekannte Funktion  $F_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{q})$ . Der Summand  $i0$  (das ist der Grenzwert  $i\epsilon$  für  $\epsilon \rightarrow 0_+$ ) ist hier beigelegt, um dem Integral in (2.18) einen definierten Sinn zu geben: Dieser Term legt fest, wie bei der Integration mit dem Pol des Integranden bei  $q^2 = k_n^2$  zu verfahren ist. Die Forderung, daß  $\epsilon$  von positiver Seite her gegen 0 geht, erfüllt gerade die Forderung, daß die Greensche Funktion (der Nenner in Gleichung (2.17)) auslaufende Kugelwellen beschreibt.<sup>3</sup>

Der erste Term dieser Integralgleichung ist an der Stelle  $\mathbf{q} = \mathbf{k}_n$  offenbar nichts anderes als die erste Bornsche Näherung für die Streuamplitude

$$U_{n0}(\mathbf{k}_n - \mathbf{k}_0) = \int e^{-i(\mathbf{k}_n - \mathbf{k}_0) \cdot \mathbf{r}'} U_{n0}(\mathbf{r}') dV_{r'} = -\frac{2\pi\hbar^2}{m\gamma} f_{n0}^B(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_n) = -F_n^{(1)}(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_n).$$

<sup>3</sup>Diese Aussage hängt von der verwendeten Vorzeichenkonvention der FOURIER-Transformation ab.

Denn genau dies bekommt man, wenn man in die Definitionsgleichung der Streuamplitude (2.12) als nullte Näherung für die Streuwelle  $\psi_m$  die einfallende ebene Welle  $\exp(i\mathbf{k}_0\mathbf{r}) \cdot \delta_{m0}$  einsetzt. Wenn man die Lösung der Integralgleichung (2.18) für die Stelle  $\mathbf{q} = \mathbf{k}_n$  ebenfalls durch sukzessive Iteration, also durch eine Neumannsche Reihe aufbaut, dann bekommt man in der Folge im  $n$ -ten Schritt die  $n$ -te Bornsche Näherung für die Streuamplitude. Die unbekannte Funktion  $F_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{q})$  ist daher, an der Stelle  $\mathbf{q} = \mathbf{k}_n$  ausgewertet, bis auf einen Vorfaktor nichts anderes als die Streuamplitude selber

$$f_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_n) = \frac{m\gamma}{2\pi\hbar^2} F_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_n). \quad (2.19)$$

Das kann man einfacher auch direkt aus Gleichung (2.10) ableiten. Es ist nämlich gemäß dem Faltungstheorem für die FOURIER-Transformation und Rücksicht auf die Definition der Streuamplitude (2.13):

$$\frac{2m\gamma}{\hbar^2} \int e^{-i\mathbf{q}\mathbf{r}} \left\{ \sum_m \int G(\mathbf{k}_n, \mathbf{r} - \mathbf{r}') U_{nm}(\mathbf{r}') \psi_m(\mathbf{r}') dV_{r'} \right\} dV_r = -G(\mathbf{k}_n, \mathbf{q}) f_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{q}).$$

Mit Rücksicht auf die Definition (2.17) haben wir außerdem

$$G(\mathbf{k}, \mathbf{q}) = \int \frac{\exp(i\mathbf{k}\mathbf{r} - i\mathbf{q}\mathbf{r})}{4\pi r} dV_r = \frac{1}{\mathbf{q}^2 - \mathbf{k}^2}, \quad (2.20)$$

$$G(\mathbf{k}, \mathbf{r}) = \int \frac{\exp(i\mathbf{q}\mathbf{r})}{\mathbf{q}^2 - \mathbf{k}^2 - i0} \frac{dV_q}{(2\pi)^3} = \frac{\exp(i\mathbf{k}\mathbf{r})}{4\pi r}. \quad (2.21)$$

Würde man bei dem letzten Integral im Nenner  $+i0$  statt  $-i0$  schreiben, so bekommt man statt der auslaufenden Kugelwelle eine einlaufende Kugelwelle.

Für die Streuamplitude gilt daher die Integralgleichung

$$f_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_n) = f_{n0}^B(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_n) - \frac{1}{4\pi} \sum_m \int \frac{f_{nm}^B(\mathbf{q}', \mathbf{k}_n) f_m(\mathbf{k}_0, \mathbf{q}')}{\mathbf{q}'^2 - \mathbf{k}_m^2 - i0} \frac{dV_{q'}}{(2\pi)^3}. \quad (2.22)$$

## 2.6 Übergang zur formalen Streutheorie

*Bei den Bezeichnungen ist darauf zu achten, daß sie für das Erfinden bequem sind. Dies ist am meisten der Fall, so oft sie die innerste Natur der Sache mit Wenigem ausdrücken und gleichsam abbilden. So wird nämlich auf wunderbare Weise die Denkarbeit vermindert.*

*(Leibniz, in: Über die Analysis des Unendlichen, S. 74)*

Betrachtet man die Struktur des Ausdrucks (2.18), so fällt auf, daß er die Form eines Matrixelementes hat. Um im folgendem hierbei die Notation zu vereinfachen, seien die Produkte aus den ungestörten Zuständen des Elektrons und des Objektes mit einem einzelnen griechischen Buchstaben bezeichnet [129]. Es sei also z. B.

$$|\alpha\rangle := |\mathbf{k}_0\rangle|0\rangle \equiv e^{i\mathbf{k}_0\mathbf{r}} \cdot \Psi_0(\mathbf{R}). \quad (2.23)$$

Dann wird durch

$$\langle\beta|\alpha\rangle = \delta(\beta - \alpha) \quad (2.24)$$

die Orthonormalität dieser Zustände beschrieben, und die Summation über die Zustände wird, bei der obigen Wahl der ungestörten Zustände, durch

$$\int d\alpha \cdots = \sum_n \int \frac{dV_k}{(2\pi)^3} \cdots \quad (2.25)$$

abgekürzt, sodaß die sich damit ferner die Vollständigkeitsrelation

$$|\Phi\rangle = \int |\alpha\rangle \langle \alpha | \Phi \rangle d\alpha \quad (2.26)$$

schreibt. Dabei ist zu beachten, daß der konkrete Ausdruck für das Differential rechterhand in (2.25) natürlich von der Wahl der Eigenzustände abhängt.

Mit dieser Konvention kann man für die Gleichung (2.18) an der Stelle  $\mathbf{q} = \mathbf{k}_n$

$$T_{\beta\alpha} = \langle \beta | \hat{U} | \alpha \rangle - \int \frac{\langle \beta | \hat{U} | \gamma \rangle T_{\gamma\alpha}}{E_\gamma - E_\alpha - i0} d\gamma = U_{\beta\alpha} + \int \frac{U_{\beta\gamma} T_{\gamma\alpha}}{E_\alpha - E_\gamma + i0} d\gamma \quad (2.27)$$

schreiben, wobei wir uns hier erlaubt haben, von der gemischten Energie-Impuls-Darstellung in Gleichung (2.18) zur reinen Energie-Darstellung der Zustände des ungestörten Gesamtsystems überzugehen. Die Energieeigenwerte im Nenner der Gleichung (2.27) bezeichnen daher auch die Energieeigenwerte des ungestörten Gesamtsystems, und nicht etwa nur diejenigen des Objektes. Den in der kinematisch korrigierten Schrödingergleichung (2.5) auftretenden relativistischen Parameter  $\gamma$  verstecken wir hier zweckmäßigerweise in der potentiellen Energie der Wechselwirkung  $U$  und bezeichnen dieses Produkt weiterhin mit dem Buchstaben  $U$ . Die Matrix  $T_{\beta\alpha}$  wird als Übergangsmatrix bezeichnet. Ihre Matrixelemente sind nach dem obigen offenbar im wesentlichen gleich den Streuamplituden.

Aus (2.27) ergibt sich durch Iteration die Störungsreihe

$$T_{\beta\alpha} = U_{\beta\alpha} + \int \frac{U_{\beta\gamma} U_{\gamma\alpha} d\gamma}{E_\alpha - E_\gamma + i0} + \iint \frac{U_{\beta\gamma} U_{\gamma\gamma'} U_{\gamma'\alpha} d\gamma d\gamma'}{(E_\alpha - E_\gamma + i0)(E_\alpha - E_{\gamma'} + i0)} + \&c. \quad (2.28)$$

Diese Methode der Berechnung der Übergangsmatrix  $T_{\beta\alpha}$  wird heutzutage als „antiquierte“ oder „altmodische“ Störungstheorie bezeichnet [129].<sup>4</sup>

## 2.7 Die Lippmann-Schwinger Gleichung

Die Art und Weise, wie wir die Gleichung (2.18) gewonnen haben, legt es nahe, für die Elemente der Übergangsmatrix den Ausdruck

$$T_{\beta\alpha} = \int \langle \beta | \hat{U} | \gamma \rangle \langle \gamma | \alpha^{(+)} \rangle d\gamma = \langle \beta | \hat{U} | \alpha^{(+)} \rangle \quad (2.29)$$

anzusetzen. Darin bezeichnet  $|\alpha^{(+)}\rangle$  die vollständige Streulösung, die asymptotisch die auslaufenden gestreuten Wellen ergibt, also

$$|\alpha^{(+)}\rangle := \sum_n |\psi_n\rangle |n\rangle \equiv \sum_n \psi_n(\mathbf{r}) \Psi_n(\mathbf{R}) =: \Psi_{>}(\mathbf{R}, \mathbf{r}). \quad (2.30)$$

<sup>4</sup>The method of calculation based on [this] Eq. . . . , is today known as *old-fashioned perturbation theory* [129] (Hervorhebung von Weinberg).

Einsetzen dieses Ausdrucks für  $T_{\beta\alpha}$  in die Gleichung (2.27) ergibt zunächst

$$\langle\beta|U\alpha^{(+)}\rangle = \langle\beta|\hat{U}|\alpha\rangle + \int \frac{\langle\beta|\hat{U}|\gamma\rangle \langle\gamma|\hat{U}|\alpha^{(+)}\rangle}{E_\alpha - E_\gamma + i0} d\gamma,$$

oder, da dies für alle Endzustände  $\beta$  gelten muß

$$|\alpha^{(+)}\rangle = |\alpha\rangle + \int \frac{|\gamma\rangle \langle\gamma|\hat{U}|\alpha^{(+)}\rangle}{E_\alpha - E_\gamma + i0} d\gamma = |\alpha\rangle + \frac{1}{E_\alpha - \hat{H} + i0} \int |\gamma\rangle \langle\gamma|\hat{U}|\alpha^{(+)}\rangle d\gamma. \quad (2.31)$$

Darin ist  $\hat{H}$  der HAMILTON-Operator des Gesamtsystems **ohne** die potentielle Energie der Wechselwirkung  $U$ . Vermöge der vorausgesetzten Vollständigkeit der ungestörten Eigenlösungen  $|\gamma\rangle$  des Gesamtsystems finden wir aus dieser Gleichung die *Lippmann-Schwinger Gleichung* [80]:<sup>5</sup>

$$|\alpha^{(+)}\rangle = |\alpha\rangle + \frac{1}{E_\alpha - \hat{H} + i0} \hat{U}|\alpha^{(+)}\rangle. \quad (2.32)$$

Diese implizite und höchst formale Gleichung für die Streulösung  $|\alpha^{(+)}\rangle$  ist äquivalent zur Integralgleichung (2.10). Um das zu überprüfen, ergänzen wir zunächst die Gleichung (2.10) zur Gleichung für die vollständigen Streulösung<sup>6</sup>

$$\Psi_{>}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) = \Psi_{<}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) - \frac{2m}{\hbar^2} \sum_n \int G(\mathbf{k}_n, \mathbf{r} - \mathbf{r}') \langle n|\hat{U}|\Psi_{>}\rangle dV_{r'}, \quad (2.33)$$

worin der Anfangszustand des Gesamtsystems

$$\Psi_{<}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) = e^{ik_0 r} \Psi_0(\mathbf{R}) \quad (2.34)$$

lautet. Hier wurde für den Anfangszustand des Elektrons eine ebene Welle gewählt. Diese Gleichung hat jetzt offensichtlich die gleiche Form, wie die Zwischenstufe (2.31) der *Lippmann-Schwinger Gleichung*. Gehen wir in dieser Gleichung zur Ortsdarstellung mittels

$$\langle \mathbf{r} \mathbf{R} | \alpha \rangle = e^{ik_0 r} \Psi_0(\mathbf{R}) = \Psi_{<}(\mathbf{R}, \mathbf{r})$$

und

$$\langle \mathbf{r} \mathbf{R} | \alpha^{(+)} \rangle = \sum_n \psi_n(\mathbf{r}) \Psi_n(\mathbf{R}) = \Psi_{>}(\mathbf{R}, \mathbf{r})$$

über, so ergibt das die Integralgleichung

$$\Psi_{>}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) = \Psi_{<}(\mathbf{R}, \mathbf{r}) + \frac{2m}{\hbar^2} \sum_n \iint \frac{e^{i\mathbf{k}(\mathbf{r}-\mathbf{r}')}}{\mathbf{k}_n^2 - \mathbf{k}^2 + i0} \frac{dV_k}{(2\pi)^3} \langle n|\hat{U}|\Psi_{>}\rangle dV_{r'}.$$

Mit Rücksicht auf die Gleichung (2.21) ist das mithin identisch mit der Gleichung (2.33).

Die *Lippmann-Schwinger Gleichung* beschreibt daher elastische **und** inelastische Streuprozesse. Dies wollte ich hierhergesetzt haben, weil bei der flüchtigen Lektüre der Darstellung der formalen Streutheorie im Merzbacher [85] oder, etwas weniger, bei Weinberg [129]

<sup>5</sup>Dort ist das die Gleichung (1.61).

<sup>6</sup>Dabei ist zu beachten, daß wir den relativistischen Faktor  $\gamma$  jetzt mit  $U$  vereinigt haben.

sich einem leicht der Eindruck aufdrängt, die dortigen Aussagen wären alle nur auf den dort mehr oder weniger explizit angenommenen Fall der elastischen Streuung beschränkt.

Die Tatsache, daß dieser Schluß auf den asymptotischen Lösungen  $|\alpha^{(+)}\rangle$  der vollständigen Schrödingergleichung (2.2) des Gesamtsystems beruht und nicht auf den Lösungen  $|\alpha\rangle$  der wechselwirkungsfreien Schrödingergleichung, bedeutet, daß dem Elektron nach der Streuung keine Wellenfunktion zukommt. Nach der Wechselwirkung beider Teilsysteme miteinander gibt es nur eine Wellenfunktion für das Gesamtsystem, und allein diese ist physikalisch von Belang. Die Entwicklung dieser nach dem (vorausgesetzten) VONS der  $|\alpha\rangle$  dient lediglich als ein mathematisches Hilfsmittel zur Berechnung der Lösung der vollständigen Schrödingergleichung.

## 2.8 Die S-Matrix

In der *Lippmann-Schwinger Gleichung* bezeichnet  $|\alpha^{(+)}\rangle$  denjenigen asymptotischen Zustand des Gesamtsystems, bei dem ein anfänglicher Zustand  $|\alpha\rangle$  zu auslaufenden sphärischen Wellen führt. Ebenso kann man mit  $|\beta^{(-)}\rangle$  denjenigen Zustand des Gesamtsystems bezeichnen, bei dem anfangs einlaufende sphärische Wellen zu einem asymptotischen Zustand  $|\beta\rangle$  des Gesamtsystems führen. Die  $|\alpha^{(+)}\rangle$ ,  $|\beta^{(-)}\rangle$  sind dabei asymptotische Lösungen der Schrödingergleichung des Gesamtsystems (2.2). Für die Übergangsamplitude des Prozesses  $\alpha \rightarrow \beta$  des Gesamtsystems kann man deshalb das Matrixelement

$$S_{\beta\alpha} = \langle \beta^{(-)} | \alpha^{(+)} \rangle \quad (2.35)$$

anschreiben [129]. Die Matrix  $S_{\beta\alpha}$  wird als Streumatrix oder kurz als S-Matrix bezeichnet. Wenn es keine Wechselwirkung gibt, dann erwarten wir, daß die S-Matrix einfach gleich  $\delta(\beta - \alpha)$  ist. Die Reaktionsrate für den Prozesses  $\alpha \rightarrow \beta$  wird daher proportional zu  $|S_{\beta\alpha} - \delta(\beta - \alpha)|^2$  sein.

Um das zu verifizieren, lösen wir die *Lippmann-Schwinger Gleichung* für  $|\beta^{(-)}\rangle$

$$|\beta^{(-)}\rangle = |\beta\rangle + \frac{1}{E_\beta - \hat{H} - i0} \hat{U} |\beta^{(-)}\rangle \quad (2.36)$$

formal nach  $|\beta^{(-)}\rangle$  durch Multiplikation mit dem Nenner auf. Durch Addition und Subtraktion von  $\hat{U}|\beta\rangle$  ergänzen wir dann den HAMILTON-Operator für das nichtwechselwirkende System  $\hat{H}$  zum HAMILTON-Operator  $\hat{H}'$  für das wechselwirkende Gesamtsystem. Das ergibt

$$\{E_\beta - \hat{H}' - i0\} |\beta^{(-)}\rangle = \{E_\beta - \hat{H}' - i0\} |\beta\rangle + \hat{U} |\beta\rangle$$

oder

$$|\beta^{(-)}\rangle = |\beta\rangle + \frac{1}{E_\beta - \hat{H}' - i0} \hat{U} |\beta\rangle. \quad (2.37)$$

Dieser Ausdruck ist formal ähnlich wie die *Lippmann-Schwinger Gleichung* aufgebaut. Allerdings mit dem wesentlichen Unterschied, daß hier im Nenner der HAMILTON-Operator für das Gesamtsystem steht.

Setzen wir nun dieses Ergebnis in den Ausdruck (2.35) für die S-Matrix ein, so bekommen wir zunächst

$$S_{\beta\alpha} = \langle \beta | \alpha^{(+)} \rangle + \left\langle \left\{ \frac{1}{E_\beta - \hat{H}' - i0} \hat{U} |\beta\rangle \right\} \right| \alpha^{(+)} \rangle.$$

Verwenden wir nun für  $|\alpha^{(+)}\rangle$  die *Lippmann-Schwinger Gleichung*, so erhält man weiter

$$S_{\beta\alpha} = \langle\beta|\left\{|\alpha\rangle + \frac{1}{E_\alpha - \hat{H} + i0} \hat{U}|\alpha^{(+)}\rangle\right\}\rangle + \left\langle\left\{\frac{1}{E_\beta - \hat{H}' - i0} \hat{U}|\beta\rangle\right\}|\alpha^{(+)}\rangle\right\rangle.$$

Darin ist nun aber  $|\beta\rangle$  ein Eigenzustand von  $\hat{H}$  zum Eigenwert  $E_\beta$  und  $\alpha^{(+)}$  ist ein asymptotischer Eigenzustand von  $\hat{H}'$  zum Eigenwert  $E_\alpha$ . Damit kann man für diesen Ausdruck schreiben

$$S_{\beta\alpha} = \delta(\beta - \alpha) + \left\{-\frac{1}{E_\beta - E_\alpha - i0} + \frac{1}{E_\beta - E_\alpha + i0}\right\} \langle\beta|\hat{U}|\alpha^{(+)}\rangle.$$

Der Term in der Klammer ergibt bei Ausführung des durch den Imaginärteil  $\pm i0$  angedeuteten Grenzwertprozesses  $-2\pi i \delta(E_\beta - E_\alpha)$ . Diese  $\delta$ -Funktion drückt also die selbstverständliche Forderung der Erhaltung der Gesamtenergie beim Streuvorgang aus.

Damit finden wir für die S-Matrix schließlich den Ausdruck

$$S_{\beta\alpha} = \delta(\beta - \alpha) - 2\pi i \delta(E_\beta - E_\alpha) T_{\beta\alpha}. \quad (2.38)$$

Da hierin die Übergangsmatrix  $T_{\beta\alpha} = \langle\beta|\hat{U}|\alpha^{(+)}\rangle$  lautet, bekommt man hieraus sofort den Ausdruck der ersten Bornschen Näherung für die S-Matrix, indem man darin  $|\alpha^{(+)}\rangle$  durch den Eigenzustand  $|\alpha\rangle$  des Gesamtsystems ohne Wechselwirkung ersetzt

$$S_{\beta\alpha}^B = \delta(\beta - \alpha) - 2\pi i \delta(E_\beta - E_\alpha) \langle\beta|\hat{U}|\alpha\rangle. \quad (2.39)$$

## 2.9 Unitaritätsrelation und optisches Theorem

Die gemäß Gleichung (2.35) definierte S-Matrix ist unitär [54], denn es gilt

$$\int \{S_{\gamma\beta}^*\}^T S_{\beta\alpha} d\beta = \int S_{\beta\gamma}^* S_{\beta\alpha} d\beta = \int \langle\gamma^{(+)}|\beta^{(-)}\rangle \langle\beta^{(-)}|\alpha^{(+)}\rangle d\beta = \langle\gamma^{(+)}|\alpha^{(+)}\rangle$$

vermöge der Vollständigkeitsrelation (2.26). Wegen der Orthonormalität der Zustände  $|\alpha^{(+)}\rangle$  haben wir somit schließlich

$$\int S_{\beta\gamma}^* S_{\beta\alpha} d\beta = \delta(\gamma - \alpha). \quad (2.40)$$

Wenn wir darin die Darstellung der S-Matrix (2.38) einsetzen, ergibt das

$$\begin{aligned} \int S_{\beta\gamma}^* S_{\beta\alpha} d\beta &= \delta(\gamma - \alpha) - 2\pi i \delta(E_\gamma - E_\alpha) T_{\gamma\alpha} + 2\pi i \delta(E_\gamma - E_\alpha) T_{\alpha\gamma}^* + \\ &+ (2\pi)^2 \int \delta(E_\beta - E_\gamma) \delta(E_\beta - E_\alpha) T_{\beta\gamma}^* T_{\beta\alpha} d\beta \stackrel{!}{=} \delta(\gamma - \alpha). \end{aligned}$$

Damit finden wir die folgende *Unitaritätsbedingung* für die Übergangsmatrix

$$i T_{\gamma\alpha} - i T_{\alpha\gamma}^* = 2\pi \int \delta(E_\beta - E_\alpha) T_{\beta\gamma}^* T_{\beta\alpha} d\beta. \quad (2.41)$$

Für den Spezialfall  $\gamma = \alpha$  lautet sie

$$\Im T_{\alpha\alpha} = -\pi \int \delta(E_\beta - E_\alpha) |T_{\beta\alpha}|^2 d\beta. \quad (2.42)$$

Die Formel (2.41) für die Übergangsmatrix können wir auch durch die dazu proportionale Streuamplitude ausdrücken. Zu dem Ende vergleichen wir die Formeln (2.18) und (2.19) für die Streuamplitude mit dem Ausdruck (2.27) für die Übergangsmatrix und finden dadurch den folgenden Zusammenhang zwischen ihnen<sup>7</sup>

$$f_{\beta\alpha} = -\frac{m}{2\pi\hbar^2} T_{\beta\alpha}. \quad (2.43)$$

Ferner seien die Eigenfunktionen  $|\alpha\rangle$  des ungestörten Systems durch (2.23) und die asymptotischen Eigenfunktionen  $|\alpha^{(+)}\rangle$  des Gesamtsystems durch (2.30) gegeben. Wir haben daher zunächst für die Streuamplitude

$$f_{\beta\alpha} = -\frac{m}{2\pi\hbar^2} \langle\beta|\hat{U}|\alpha^{(+)}\rangle$$

den Ausdruck<sup>8</sup>

$$f_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_n) = -\frac{m\gamma}{2\pi\hbar^2} \iint e^{-i\mathbf{k}_n \mathbf{r}'} \Psi_n^*(\mathbf{R}) U(\mathbf{R}, \mathbf{r}') \left\{ \sum_m \psi_m(\mathbf{r}') \Psi_m(\mathbf{R}) \right\} dV_R dV_{r'}, \quad (2.44)$$

welcher nach Ausführen der Integration über den Konfigurationsraum des Objektes  $dV_R$  offenbar mit dem Ausdruck (2.13) für die Streuamplitude übereinstimmt. Wenn wir weiterhin den Zusammenhang

$$\delta(E_\beta - E_\alpha) = \frac{m\gamma}{\hbar^2 k_\alpha} \delta(k_\beta - k_\alpha)$$

beachten, dann ergibt sich für das Integral rechterhand in Gleichung (2.41) der Ausdruck

$$2\pi \left( \frac{2\pi\hbar^2}{m\gamma} \right)^2 \frac{m\gamma}{\hbar^2} \sum_m \int \frac{dV_k}{(2\pi)^3} \frac{\delta(k - k_m)}{k_m} f_n^*(\mathbf{k}_n, \mathbf{k}) f_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}).$$

Zusammen haben wir so also die folgenden *Unitaritätsbedingungen* für die Streuamplitude gefunden

$$\frac{f_n(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_n) - f_n^*(\mathbf{k}_n, \mathbf{k}_0)}{2i} = \sum_m \frac{k_m}{4\pi} \int f_m^*(\mathbf{k}_n, \mathbf{k}) f_m(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}) d\Omega_k. \quad (2.45)$$

Die Integrationen laufen darin jeweils über das Raumwinkelelement, dessen Polarachse von der Richtung des Streuvektors  $\mathbf{k}_m$  bestimmt wird. Da aber hier über den ganzen Raumwinkel zu integrieren ist, hängt das Ergebnis nicht von der Wahl der Polarachsen ab. Man kann daher über sie ggf. zweckmäßig verfügen. Dieser Ausdruck für die *Unitaritätsbedingungen* stimmt überein mit dem auf andere Art berechneten Ausdruck (144,8) in [70].

Für den Spezialfall  $n = 0$ , also der elastischen Streuamplitude, ergibt sich daraus, wenn wir hier die finale Streurichtung von  $\mathbf{k}_{n=0}$  mit  $\mathbf{k}' = k_0 \mathbf{r}/r$  und die initiale Streurichtung  $\mathbf{k}_0$  mit  $\mathbf{k}$  bezeichnen die *Unitaritätsbedingung* für die elastische Streuamplitude

$$\frac{f_0(\mathbf{k}, \mathbf{k}') - f_0^*(\mathbf{k}', \mathbf{k})}{2i} = \sum_m \frac{k_m}{4\pi} \int f_m^*(\mathbf{k}', \mathbf{q}) f_m(\mathbf{k}, \mathbf{q}) d\Omega_q. \quad (2.46)$$

<sup>7</sup>Die potentielle Energie der Wechselwirkung  $U$  sollte gemäß Fußnote 6 auf Seite 16 den relativistischen Parameter  $\gamma$  enthalten.

<sup>8</sup>Hier erlauben wir uns die Freiheit, den relativistischen Parameter  $\gamma$  wieder aus  $U$  herauszuziehen, und die Bezeichnung beizubehalten. Da die konkrete Bedeutung von  $U$  aus dem jeweiligen Kontext ersichtlich ist, dürfte dies zu keinen Mißverständnissen führen.

Für die Vorwärtsstreuung  $\mathbf{k} = \mathbf{k}'$  heißt das speziell

$$\Im f_0(\mathbf{k}, \mathbf{k}) = \sum_m \frac{k_m}{4\pi} \int |f_m(\mathbf{k}, \mathbf{q})|^2 d\Omega_q = \frac{k_0}{4\pi} \{\sigma_e + \sigma_i\} = \frac{k_0}{4\pi} \sigma_t. \quad (2.47)$$

Darin bedeuten  $\sigma_e, \sigma_i, \sigma_t$  den elastischen, inelastischen und totalen Streuquerschnitt. Für diese hat man nämlich den Zusammenhang<sup>9</sup>

$$\frac{d\sigma_m}{d\Omega} = \frac{k_m}{k_0} |f_m(\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_m)|^2. \quad (2.48)$$

Der Zusammenhang (2.47) ist der Inhalt des sogenannten *optischen Theorems* [85][62]. Es zeigt, daß der Imaginärteil der elastischen Vorwärtsstreuamplitude ein Maß für den Verlust an Intensität des Primärstrahls aufgrund von elastischer und inelastischer Streuung darstellt [36][54].<sup>10</sup> Das *optische Theorem* ist ein Spezialfall der *Unitaritätsrelation* für die elastische Streuamplitude (2.46) und basiert mithin auf der Erhaltung der Wahrscheinlichkeit. Die *Unitaritätsrelationen* (2.45) und (2.46) stellen eine Beziehung her zwischen den verschiedenen Streuprozessen. Sie sind damit auch Ausdruck der Selbstkonsistenz der Lösungen des gekoppelten Differentialgleichungssystems (2.5). Dies ist mithin eine Forderung, die man an eine konsistente Beschreibung des Streuvorgangs stellen muß. Die erste Bornsche Näherung für die Streuamplitude erfüllt diese Forderung nicht. Da die potentielle Energie der Wechselwirkung  $U$  reell ist<sup>11</sup>, hat man hier vielmehr, mit Rücksicht auf die Definition (2.23) der wechselwirkungsfreien Zustände  $|\alpha\rangle$

$$T_{\beta\alpha}^B = \langle\beta|\hat{U}|\alpha\rangle = \left\{ \langle\alpha|\hat{U}|\beta\rangle \right\}^* = \left\{ T_{\alpha\beta}^B \right\}^*,$$

sodaß für die erste Bornsche Näherung die *Unitaritätsrelation* (2.41) nicht erfüllt ist. Das *optische Theorem* (2.47) unterstreicht die Tatsache, daß die Streuamplitude notwendig eine komplexe Größe sein muß, damit die Wahrscheinlichkeit erhalten bleiben kann. Wenn, wie bei der ersten Bornschen Näherung, dies nicht der Fall ist, bedeutet das, daß das Objekt in seiner gesamten Ausdehnung unter dem Einfluß des ungeschwächten Primärstrahls steht. Da sich dessen Intensität also nicht ändert, entsteht hier Streustrahlung, und damit Energie, quasi aus dem Nichts.

Die erste Bornsche Näherung bezeichnet man auch als kinematische Näherung. Die historische Bewandnis des Namens „kinematisch“ schildert P. P. Ewald in dem lesenswerten Übersichtsartikel [34] (s. a. [32]) wie folgt: Bei den Laueschen Röntgenstreudiagrammen an Kristallen bestrahlt man diesen mit Strahlung kontinuierlichen Spektrums. Aus diesem Spektrum sondert der Kristall bestimmte Wellenlängen aus. Der Kristall funktioniert hier also als Spektralapparat. In den vom Kristall abgebeugten Strahlen steckt dann im Vergleich zum Primärstrahl relativ wenig Intensität. Man mußte viele Stunden lang belichten, damit man überhaupt etwas anderes als den Nullstrahl sah. Der Primärstrahl hingegen hinterließ schon nach wenigen Sekunden einen sichtbaren Fleck. So gesehen erschien also die obige Annahme außerordentlich gut gerechtfertigt, daß der ganze Kristall unter dem Einfluß des ungeschwächten Primärstrahls steht, und man Doppel- und Mehrfachstreuwirkungen<sup>12</sup> vernachlässigen darf. Das bedeutet insbesondere, daß man die Streustrahlung als so schwach

<sup>9</sup>Siehe z. B. in [70] Formeln (144.2) und (144.4)

<sup>10</sup>Heisenbergs Streuamplitude  $f$  enthält einen Faktor  $i$ , den man sonst normalerweise herauszieht.

<sup>11</sup>bzw. der HAMILTON-Operator für das Gesamtsystem hermitisch sein muß, damit die Gesamtenergie erhalten bleibt.

<sup>12</sup>In dem Gebrauch dieser Wörter bei Ewald liegt eine kleine Feinheit verborgen. Zu dessen besserem Verständnis zitiere ich Ewald hier wörtlich:

*In this theory each atom is assumed to scatter a fraction of the optical wave passing over it, and*



ansieht, daß man die durch sie verursachte Veränderung des die Atome des Kristall umgebenden Gesamtstreuelfeldes nicht in Betracht zieht, und man daher quadratische und höhere Potenzen der die Streuwirkung beschreibenden Größen vernachlässigen darf, wann immer die Terme erster Ordnung nicht verschwinden. Für einen unfrequenten oder monochromatischen Primärstrahl ist das allerdings nicht richtig. Die Streustrahlung ist hier keine kleine Größe. Das gilt auch für die Streuung von Röntgenstrahlen.

Man sieht an dieser Ableitung der *Unitaritätsrelationen* und des *optischen Theorems* außerdem schön, wie elegant man mittels der formalen Streutheorie zu den Resultaten (2.45) und (2.46) gelangen kann. Wollte man diese Resultate etwa wie Feenberg [36], Glauber [44][45] oder Rose [109] im Falle der rein elastischen Streuung direkt mittels den Gleichungen (2.10) bzw. (2.33) dadurch herleiten, daß man die Erhaltung der Wahrscheinlichkeitsstromdichte für die Streuung fordert, dann führt das zu längeren und unübersichtlichen Rechnungen. Diese mögen sich wohl durch Nutzung der Ausstrahlungsbedingung [118] etwas kürzer gestalten lassen, aber ich sehe keinen Weg, wie das kurz erledigt werden könnte, ohne daß man in so großen Sprüngen darüber hinwegsteigt, daß man die Rechnung später selbst nicht mehr versteht.

Da wir nun mit den  $|\alpha^{(+)}\rangle$  einen durch die Streuamplituden (2.43) formal gegebenen Ausdruck für die Wellenfunktion nach der Streuung haben, könnten wir als nächstes diese Ausdrücke in die Dichtematrix in der Ortsdarstellung (1.2) einsetzen, um damit die nachfolgende Bildentstehung durch die Abbildungsoptik des Elektronenmikroskops durch die Streuamplituden zu beschreiben [107].

Aber damit dieses Programm nicht bloß formal durchführbar bleibt, wäre es auch nötig, daß wir diese Streuamplituden wirklich berechnen können. Zu dem Ende müßten wir die notwendige Voraussetzung dieses Programmes erfüllen, daß wir im Besitz eines VONS für die Objektzustandsfunktionen sind. Im nächsten Kapitel werden wir uns deshalb ansehen, wie es darum bestellt ist.

*So große Mühe habe ich also auf diese Nachahmung der früheren Meister verwandt. Damit schließe ich diesen II. Teil meiner Untersuchungen.*

*(Kepler, Astronomia nova)*

---

*thereby to become the source of a spherical wave or "wavelet." [ . . . ] The characteristic feature of the kinematical theory is in either case that each atom is acted upon only by the "incident" or the "primary" wave; double and multiple scattering is neglected, that is, no account is taken of that part of the total optical field surrounding a given atom which is the sum of the wavelets produced by the other atoms. [ . . . ] Its characteristic assumption [is] that the resonators are acted upon only by a known "incident" wave. The resonators are not coupled by their emissions, and each performs separately a forced vibration under the action of the incident wave [34].*

Wie man sieht, bedeutet hier das Wort „Einfachstreuung“ bzw. „kinematische“ Streuung nicht, daß man bereits die Streuwirkung **eines** Atoms nur approximativ berechnet, wie man das mit der ersten Bornschen Näherung macht, und in der quantenmechanischen Streutheorie üblicherweise als kinematische Näherung bezeichnet. Vielmehr nimmt man hier nur an, daß die Streubeiträge der Atome im Vergleich mit der Primärwelle so klein sind, daß man auf die durch die Streuung bewirkte Änderung des die einzelnen Atome umgebenden Feldes keine Rücksicht zu nehmen braucht. Die erste Bornschen Näherung ist in diesem Sinne noch eine Approximationsstufe mehr als jene kinematische Näherung. Man vergleiche dazu auch [77].

# Kapitel 3

## Grundgleichungen der Elektronenstreuung II

*Die zugrunde liegenden physikalischen Gesetze für die mathematische Theorie eines Großteils der Physik und der gesamten Chemie sind demzufolge bekannt. Das einzige Problem liegt darin, daß die exakte Anwendung dieser Regeln zu Gleichungen führt, die viel zu schwierig zu lösen sind.*

*(P.A.M. Dirac, Proc. Roy. Soc. **123**, 714 (1929))*

Den Einfluß der Wärmebewegung hat zuerst P. Debye 1913 für Röntgenstrahlinterferenzen untersucht. Zu dem Ende nahm Debye dabei an, daß die Atome eines einfachen Gitters unabhängig voneinander um ihre Ruhelage schwingen, genauso wie Einstein es bei seiner Theorie der spezifischen Wärme getan hatte. Die Frequenz der Bewegung sollte dabei bei allen Atomen dieselbe sein. Für eine gegebene Lage der Atome berechnete er dann die Intensität der Streustrahlung, und mittelte danach statistisch, gemäß der Boltzmannschen Statistik, über alle möglichen Werte der Verrückungen der Atome aus den Gleichgewichtslagen. Dieses (alte) Debye-Modell firmiert heute in Elektronenmikroskopikerkreisen unter dem Namen Einsteins.

Daß die Atome in ihren Bewegungen voneinander unabhängig seien, ist zweifellos eine völlig unzureichende Annahme. Dem ist gewiß nicht so, kommt doch diese Schwingung der Atome überhaupt erst durch die Krafteinwirkung der umgebenden Atome zustande. 1914 hat P. Debye dann deshalb die Wärmebewegungen der Atome auf die Eigenschwingungen eines Raumgitters zurückgeführt. In beiden Fällen berechnet Debye dabei übrigens den Einfluß der Wärmebewegungen der Atome auf die Streustrahlung so, als ruhten die Atome in verschobenen Lagen, und mittelt dann die sich daraus ergebene Streustrahlung über die Wahrscheinlichkeitsverteilung dieser Lagen [76].

In diesem Kapitel sehen wir uns das „Objekt“-Problem aus Sicht der Quantenmechanik etwas näher an. Wir werden es natürlich auch nicht lösen können, aber wir werden immerhin eine genauere Vorstellung davon bekommen, was man tun müßte, wollte man es lösen, und wie sich die gekoppelten Bewegungen der Atome im Objekt beschreiben lassen. Der letzte Punkt gibt uns dann wenigstens eine konkrete Vorstellung davon, wie wir die die Streuung des Elektrons beschreibenden Ausdrücke des nächsten Kapitels zu berechnen haben, sodaß dieser zweite Umlauf doch etwas Nützliches ergibt.

### 3.1 Aufstellung der Streugleichungen

Zur Aufstellung der Streugleichungen gehen wir wieder von der SCHRÖDINGER-Gleichung für das Gesamtsystem (2.2) aus, schreiben aber diesmal in dem HAMILTON-Operator des Gesamtsystems

$$\hat{H} = \hat{T}_e + U(X, x, \mathbf{r}) + \hat{H}_O, \quad (3.1)$$

den HAMILTON-Operator des Objektes detaillierter auf:

$$\hat{H}_O = \hat{T}_K + \hat{T}_E + U(X, x). \quad (3.2)$$

Darin haben wir für die einzelnen Operatoren die Abkürzungen

$$\hat{T}_e = -\frac{\hbar^2}{2m\gamma} \partial_r^2, \quad \hat{T}_K = \frac{\hat{P}^2}{2M} = -\frac{\hbar^2}{2} \sum_l \frac{\partial_{X_l}^2}{M_l}, \quad \hat{T}_E = \frac{\hat{P}_E^2}{2m} = -\frac{\hbar^2}{2m} \sum_k \partial_{x_k}^2 \quad (3.3)$$

verwendet. Die potentielle (Coulomb-) Energie des Objekts wird darin mit  $U(X, x)$  und die potentielle (Coulomb-) Wechselwirkungsenergie des Elektrons mit dem Objekt mit  $U(X, x, \mathbf{r})$  bezeichnet. Bei den sich auf das Objekt beziehenden Koordinaten  $X, x$  wird in diesem Kapitel wieder explizit zwischen den Koordinaten der Elektronen  $x$  und denen der Kerne  $X$  unterschieden. Ferner bezeichnen  $\hat{T}_K, \hat{T}_E, \hat{T}_e$  die Operatoren der kinetischen Energie der Kerne und Elektronen des Objektes und des streuenden Elektrons. Der Index  $K$  an  $\hat{P}$  in  $\hat{T}_K$  kann offenbar, ohne daß Mißverständnisse zu befürchten sind, fortgelassen werden. Mit  $M$  wird hier der Mittelwert der Massen  $M_l$  der Kerne bezeichnet. Schließlich ist darin  $m$  die Masse eines Elektrons.

Bei dieser Zerlegung der Coulomb-Energien in eine Energie des Objektes im HAMILTON-Operator  $\hat{H}_O$  und eine Wechselwirkungsenergie als Störterm in  $\hat{H}$  vernachlässigt man implizit die Polarisationswirkung des streuenden Elektrons auf das Objekt, d. h. man behandelt das Problem so, wie wenn die „Probe“-Ladung des Elektrons Null wäre. In dieser Art der Zerlegung drückt sich also schon implizit aus, daß die Geschwindigkeit des einlaufenden Elektrons groß gegenüber den (relevanten) Geschwindigkeiten der Elektronen und Kerne im Objekt ist. Im umgekehrten Fall kann man das Problem nicht mehr in die zwei Teilprobleme des ungestörten Objektes und der geradlinig gleichförmigen Bewegung (ebene Welle) eines Elektrons zerlegen, um dann mit der Kenntnis der Lösung dieser Teilprobleme näherungsweise auszurechnen, wie die Bewegung des wechselwirkenden Gesamtsystems verläuft.

Um das Streuproblem eines schnellen Elektrons am Objekt gemäß der Störungstheorie zu lösen, ist es also zunächst notwendig, die Lösungen zu den Teilproblemen

$$(\hat{T}_e - T_e) \psi(\mathbf{r}) = 0, \quad (3.4)$$

und

$$(\hat{H}_O - E^O) \Psi(X, x) = 0, \quad (3.5)$$

zu finden. Darin ist  $T_e$  die anfängliche kinetische Energie des streuenden Elektrons und  $E^O$  die Gesamtenergie des Objektes.

Die Lösung der ersten Gleichung ist einfach eine ebene Welle oder eine Superposition von ebenen Wellen.

Die Lösung der zweiten Gleichung gestaltet sich ungleich komplexer. Üblicherweise denkt man es sich deshalb als durch das vollständige Orthogonal System (VONS) der  $\Psi(X, x)$  als bereits gelöst<sup>1</sup> und baut damit die Streugleichungen auf.

Im Unterschied zu diesem Procedere, werden wir uns hier einmal näher ansehen, wie man die Gleichung (3.5) bzw. das Streuproblem (3.1) denn nun wirklich lösen würde.

## 3.2 Vorüberlegung

Insgesamt haben wir hier die folgende Hierarchie der Geschwindigkeiten vorliegen:

$$v_e \gg v_E \gg v_K . \quad (3.6)$$

Man hat also zwei Möglichkeiten, das Streuproblem unter Berücksichtigung der thermischen Bewegungen der Atome des Objektes zu lösen.

- Stoß am thermischen Objekt:  
Hier löst man die Probleme in der Reihenfolge

$$v_e \gg (v_E \gg v_K) ,$$

d. h. man betrachtet die Streuung eines schnellen Elektrons am thermischen Objekt.

- Stoß am Objekt mit festen Kernlagen:

$$(v_e \gg v_E) \gg v_K .$$

Hier betrachtet man die die Streuung eines schnellen Elektrons am Objekt mit festen Kernlagen, und berücksichtigt die thermische Bewegung der Objektatome im nachhinein mit Hilfe der Störungstheorie.

Im folgenden werden wir nun beide Wege beschreiten und die erhaltenen Streugleichungen miteinander vergleichen.

---

<sup>1</sup> In diesem Zusammenhang mag es angebracht sein, hier kurz den Sinn des Begriffes „vollständiges Orthogonal System (VONS)“ zu notieren [[22], I, Kap II, §3], [[62], Kap. 2.8]:

Ein VONS  $\{\varphi\}$  erfüllt die beiden Bedingungen der Orthonormalität

$$\int \varphi_m^*(x) \varphi_n(x) dV_x = \delta_{nm} , \quad \int \varphi_v^*(x) \varphi_u(x) dV_x = \delta(u - v) ,$$

und der Vollständigkeit

$$\sum_n \varphi_n^*(y) \varphi_n(x) = \delta(x - y) , \quad \int \varphi_u^*(y) \varphi_u(x) dV_u = \delta(x - y) .$$

Dabei gilt die linke Seite, wenn das Entwicklungsintervall endlich, und die rechte Seite, wenn das Entwicklungsintervall unendlich ist. Wenn man eine Funktion  $\psi(x)$  in eine Reihe nach diesen  $\varphi_n(x)$  entwickelt, so ist darunter zu verstehen, daß gilt

$$\lim_{N \rightarrow \infty} \int \left| \psi(x) - \sum_{n=0}^N c_n \varphi_n(x) \right|^2 dV_x = 0 ,$$

was Konvergenz im quadratischen Mittel bedeutet. Darin gilt für die Entwicklungskoeffizienten  $c_n = \langle n | \psi \rangle$ . Mit diesen kann man die etwas laxe Fassung der Vollständigkeitsrelation auf eine unbedenklichere Form bringen:

$$\sum_n |c_n|^2 = \int |\psi(x)|^2 dV_x , \quad \int |c_u|^2 dV_u = \int |\psi(x)|^2 dV_x .$$

### 3.3 Erster Weg: Stoß am thermischen Objekt

Hier bringt man den HAMILTON-Operator des Gesamtsystems auf die Form

$$\hat{H} = \left[ \hat{T}_K + \left\{ \hat{T}_E + U(X, x) \right\} \right] + \hat{T}_e + U(X, x, \mathbf{r}). \quad (3.7)$$

Im ersten Schritt löst man nun das Problem des thermischen Objektes und stellt dann die Streugleichungen für den Stoß an diesem auf.

#### 3.3.1 Objektanteil

Zur näherungsweisen Lösung dieses Problems kann man das von M. Born und R. Oppenheimer beschriebenen systematischen Störungsverfahren [14], [17] anwenden. Die Fassung die Born 1951 dem Verfahren gegeben hat [[17], 406] ist besonders durchsichtig und kurz genug, um hierher gesetzt zu werden<sup>2</sup>.

Man denkt sich zunächst das rein elektronische Problem, das entsteht, wenn man die Positionen der Kerne  $X$  festhält

$$\left( \hat{T}_E + U(X, x) - E(X) \right) \Phi(X; x) = 0, \quad (3.8)$$

als durch das vollständige Orthogonalsystem der  $\Phi(X; x)$  gelöst, und zwar für alle möglichen Kernlagen  $X$ . Diese Positionen  $X$  der Kerne spielen darin die Rolle von Parametern, was durch das Semikolon im Argument der elektronischen Zustandsfunktion  $\Phi(X; x)$  angedeutet wird. Die Eigenwerte  $E$  sind folglich ebenfalls Funktionen dieser Parameter.

Man will hier also den Umstand ausnutzen, daß die elektronische Bewegung viel schneller ist, als die der Kerne, sodaß man für jede momentane Lage  $X$  der Kerne das elektronische Problem so behandelt, als wären die Kerne feste Kraftzentren. Damit stellt man sich die Dynamik des Systems als aufeinander folgende Sequenzen von statischen Problemen vor.

Die vollständige SCHRÖDINGER-Gleichung (3.5) sucht man dann durch die Reihenentwicklung

$$\Psi(X, x) = \sum_n \Psi_n(X, x) = \sum_n \phi_n(X) \Phi_n(X; x) \quad (3.9)$$

mit einer die Kernbewegung beschreibenden Zustandsfunktion  $\phi_n$  zu lösen. Der Index  $n$  bezeichnet hier den  $n$ -ten elektronischen Zustand des Objektes. Setzt man dies in (3.5) ein, multipliziert von links mit  $\Phi_m^*(X; x)$  und integriert über den Konfigurationsraum der elektronischen Zustände  $x$ , so erhält man als zu lösende Eigenwertgleichung

$$\left( \hat{T}_K + E_n(X) - E^0 \right) \phi_n(X) + \sum_m C_{nm}(X, \hat{P}) \phi_m(X) = 0 \quad (3.10)$$

mit den Kopplungskoeffizienten

$$C_{nm}(X, \hat{P}) = \sum_l \frac{A_{nm}^l \hat{P}_l + B_{nm}^l}{M_l} \quad (3.11)$$

und den Abkürzungen

$$A_{nm}^l(X) = \int \Phi_n^*(X; x) \hat{P}_l \Phi_m(X; x) dV_x, \quad (3.12)$$

$$B_{nm}^l(X) = \frac{1}{2} \int \Phi_n^*(X; x) \hat{P}_l^2 \Phi_m(X; x) dV_x. \quad (3.13)$$

<sup>2</sup>siehe auch die Artikel von Pauli, Seite 161ff und Bethe, Seite 524f in [50] sowie [85], Seite 159ff.

Betrachtet man die Diagonalelemente dieser Matrizen, so hat man wegen der gebundenen Bewegungen der Objektelektronen und dem Umstand, daß die Zustandsfunktionen reell sind, wenn kein äußeres Magnetfeld am Objekt anliegt, die Identität

$$A_{nn}^l(X) = \frac{1}{2} \hat{P}_l \int \Phi_n^2(X; x) dV_x = 0, \quad (3.14)$$

da die  $\Phi_n$  für alle Lagen  $X$  auf 1 normiert sind. Das Diagonalelement  $C_{nn}$  hängt damit nicht vom Kernimpulsoperator  $\hat{P}$  ab, ist also folglich eine reine Funktion von  $X$ . Wenn wir dieses Diagonalelement aus der Summe herausziehen, kann man die Eigenwertgleichung auf die Form

$$\left( \hat{T}_K + U_n(X) - E^O \right) \phi_n(X) + \sum_{m}' C_{nm}(X, \hat{P}) \phi_m(X) = 0 \quad (3.15)$$

bringen, worin der Strich an der Summe bedeutet, daß der Diagonalterm zu  $m = n$  wegzulassen ist. Dabei ist zu beachten, daß hier  $E^O$  die Rolle eines Energie-Eigenwertparameters spielt. Zu jedem elektronischen Zustand  $n$  des Objektes gibt es also noch eine infinite Anzahl möglicher Schwingungszustände  $\phi$  der Kerne. Die Kernzustandsfunktion  $\phi$  und der Eigenwert  $E^O$  müßten also eigentlich doppelt indiziert werden, was wir hier der Übersicht halber aber unterdrückt haben. Ferner ist darin  $U_n$  definiert als

$$U_n(X) = E_n(X) + \sum_l \frac{B_{nn}^l(X)}{M_l}. \quad (3.16)$$

Wenn man in der Eigenwertgleichung (3.15) die Koppelung der Kernvibrationen mit den elektronischen Zuständen vernachlässigen kann, also die Summe über die  $C_{nm}$  wegläßt<sup>3</sup>, erhält man für die Kernbewegungen die Gleichung

$$\left( \hat{T}_K + U_n(X) - E^O \right) \phi_n(X) = 0. \quad (3.17)$$

Darin spielen also die um die mittlere kinetische Energie der Kerne korrigierten elektronischen Eigenwerte  $E_n(X)$  als Funktion der Kernlagen  $X$  die Rolle der potentiellen Energie der Kerne. Wenn man diese Gleichung für die Kernvibrationen nach der originalen Methode von Born und Oppenheimer ableitet, dann tritt in  $U_n$  der zweite Term nicht auf [14]. Er gibt eine Korrektur, die den Anwendungsbereich der adiabatischen Näherung ausdehnt [17], denn es gilt jetzt nicht nur für kleine Auslenkungen aus der Gleichgewichtslage  $X_0$ , wie das beim originalen Verfahren von Born und Oppenheimer der Fall wäre

$$\Psi_n(X, x) = \phi_n(X) \Phi_n(X; x). \quad (3.18)$$

Das bedeutet adiabatische Bewegung und gibt dieser Näherung ihren Namen.

Die Vernachlässigung der Koppelungen  $C_{nm}$  bedeutet, daß der elektronische Zustand  $\Phi_n(X; x)$  während der Kernbewegungen unverändert erhalten bleibt. Die Elektronen folgen hier also den Kernbewegungen adiabatisch. Physikalisch bedeutet das, daß sich die Hüllenelektronen im Vergleich zu den Kernbewegungen sehr viel schneller bewegen. Sie machen also viele Umläufe, während der Ort des Kerns nahezu konstant bleibt. Ein System, das sich in einem nicht entarteten stationären Zustand befindet, verbleibt in demselben Zustand, wenn die Störung hinreichend langsam erfolgt [[70], §53]. Der elektronische Zustand verformt sich demnach einfach nach Maßgabe der Kernausslenkungen.

<sup>3</sup>Man vergleiche die Diskussion von London in [82].

Allerdings werden die Berechnungen sowohl nach der originalen Methode von Born und Oppenheimer, als auch nach dieser Modifikation von Born, sofort äußerst komplex, wenn man über diese adiabatische Näherung hinausgehen muß.

Im weiteren Gang der Rechnung muß man nun die Gleichungssysteme (3.17) oder (3.15) und (3.8) für jeden zulässigen Wert der Kernpositionen  $X$  lösen. Dies ist nur numerisch möglich und für reale Systeme mit einem enormen Rechenaufwand verbunden. Durch geschickte Reduktion des Rechenumfangs kann man heutzutage solche quantenchemische Probleme mit etwa 200 Atomen näherungsweise lösen [79].

Die näherungsweise Lösung der Kernvibrationsgleichungen (3.17) oder (3.15) könnte man nun weiter wie bei Born und Oppenheimer aufbauen, und zwar als Entwicklung für kleine Auslenkungen  $u$  der Kerne aus der Gleichgewichtslage  $X_0$ :

$$X - X_0 = u.$$

Dann wird aus (3.17) eine Gleichung für (nicht-)harmonische Kernoszillationen um  $X_0$ . Wenn man dann weiter anharmonischen Terme aus der Gleichung streicht, bekommt als Lösung für die Kernvibrationen um  $X_0$ :

$$\Psi_n(X, x) = \varphi_n(u) \Phi_n(X_0; x), \quad (3.19)$$

worin hier  $\varphi_n(u)$  als Oszillatoreigenfunktion für die Kernvibrationen aufzufassen ist. Sie hängen von den elektronischen Zuständen  $n$  ab<sup>4</sup>, denn die Eigenwerte der elektronischen Zustände bestimmen ja das Potential, in dem sich die Kerne bewegen. Diese Näherung wird *harmonische Approximation* genannt. In dieser Approximation bewegen sich die Elektronen so, wie wenn die Kerne immer in der Ruhelage verblieben. Sie beeinflussen die Kernbewegung nur insofern, als das effektive Potential  $U_n$  von der Quantenzahl  $n$  abhängt. Die Kerne wiederum vibrieren harmonisch um ihre Gleichgewichtslagen gemäß diesem effektiven Potential. Die *harmonische Approximation* vereinfacht das zu lösende elektronische Problem (3.8) außerordentlich, da man es jetzt „nur“ für die Gleichgewichtslage lösen muß.

Bei der Berechnung des Erwartungswertes des Objektpotentials in Anhang B wird sich zeigen, daß es ein ziemlich aussichtsloses Unterfangen wäre, die gesuchten Mittelwerte in der adiabatischen Näherung zu berechnen. Wir werden uns vielmehr genötigt sehen, uns auf die *harmonische Approximation* der Zustandsfunktionen zu beschränken. Mit dieser Näherung kann man die gemäß dem nächsten Kapitel notwendigen Mittelungen bei der Berechnung der Dichtematrix hinter dem Objekt besonders einfach durchführen. Die Integration über die Kernkoordinaten reduziert sich hier auf eine Faltung der elektronischen Zustandsfunktion  $\Phi_n$  mit der Zustandsfunktion für die Oszillationen der Kerne  $\varphi_n$ . Faltungsintegrale sind aber im Fourierraum vollständig entkoppelt.

Daß die Mittelwerte in Anhang B tatsächlich nur in der harmonischen Näherung berechnet werden und nicht in der adiabatischen Näherung, wird einem allerdings bei der Art, wie diese Mittelwerte üblicherweise berechnet werden, nicht sogleich einsichtig sein. Man muß aber bedenken, daß bei einer Approximation der Objektzustandsfunktion durch ein Produkt unabhängiger Atome die Berücksichtigung von thermischen Bewegungen um eine Ruhelage der Atome ein Widerspruch in sich ist, kann doch in einem solchen Fall eigentlich nur eine geradlinig gleichförmige Schwerpunktsbewegung der Atome auftreten und keine Schwingungen um eine Gleichgewichtslage. Von daher mag es einsichtig sein, daß man diese Art der Berechnung von Mittelwerten manchmal mit einer adiabatischen Approximation der Zustandsfunktionen der Objektes verwechselt, weil sich doch bei den unterstellten Kernoszillationen die Atomwellenfunktion für jeden Wert der Auslenkung des Kerns nicht

<sup>4</sup>Das heißt, daß mit dem Index  $n$  an  $\varphi_n$  hier nicht etwa die  $n$ -te Oszillatoreigenfunktion gemeint ist.

ändert, also die Auslenkung „adiabatisch“ mitmacht. Dieses Argument verfängt sich damit aber in dem obigen Widerspruch, ist doch in Wahrheit genau dieser Umstand, daß sich die Atomwellenfunktion für jeden Wert der Auslenkung des Kerns nicht ändert, eigentlich das Charakteristikum der *harmonische Approximation*, was man aber nicht so einfach einsieht, wenn man von vorneherein an ein Gas aus unabhängigen Atomen denkt.<sup>5</sup>

### 3.3.2 Streugleichung

Um nun mit Hilfe der Objekteigenfunktionen die Streugleichungen aufzufinden, nehmen wir an, daß die  $\phi_{nm}(X)$  ebenfalls ein VONS bezüglich des zweiten Index  $m$  - also für jeden gegebenen elektronischen Zustand  $n$  - bilden. Daher setzen wir für die Gesamtwellenfunktion  $\Psi(X, x, \mathbf{r})$  die doppelte Reihenentwicklung

$$\Psi(X, x, \mathbf{r}) = \sum_{n,m} \psi_{nm}(\mathbf{r}) \Psi_{nm}(X, x) = \sum_{n,m} \psi_{nm}(\mathbf{r}) \phi_{nm}(X) \Phi_n(X; x) \quad (3.20)$$

an. Darin ist  $\psi_{nm}(\mathbf{r})$  eine den Streuzustand des Elektrons beschreibende Funktion. Einsetzen dieses Ansatzes in die SCHRÖDINGER-Gleichung des Gesamtsystems

$$\left( \hat{T}_e + U(X, x, \mathbf{r}) + \hat{H}_O \right) \Psi(X, x, \mathbf{r}) = E \Psi(X, x, \mathbf{r}), \quad (3.21)$$

multiplizieren von links mit  $\Psi_{n'm'}^*(X, x) = \phi_{n'm'}^*(X) \Phi_{n'}^*(X; x)$ , sowie integrieren über den Konfigurationsraum der Objektzustände  $x, X$ , ergibt als zu lösende Eigenwertgleichung für das Streuproblem

$$\left( \hat{T}_e - E \right) \psi_{nm}(\mathbf{r}) + \sum_{n'm'} \{ U_{nm,n'm'}(\mathbf{r}) + H_{nm,n'm'}^O \} \psi_{n'm'}(\mathbf{r}) = 0. \quad (3.22)$$

Darin bedeuten

$$U_{nm,n'm'}(\mathbf{r}) = \int \Psi_{nm}^*(X, x) U(X, x, \mathbf{r}) \Psi_{n'm'}(X, x) dV_X dV_x, \quad (3.23)$$

und

$$H_{mn,m'n'}^O = \int \Psi_{mn}^*(X, x) \hat{H}_O \Psi_{m'n'}(X, x) dV_X dV_x. \quad (3.24)$$

Für dieses Matrixelement erwarten wir, das Ergebnis  $\delta_{nn'} \delta_{mm'} E_{nm}^O$  zu erhalten.

Da wir oben bei der Berechnung der Eigenwertgleichung (3.15) für die Bewegung der Objektkerne einige Zwischenrechnungen unterdrückt haben, werden wir hier, um der leichteren Nachvollziehbarkeit Willen, dieses Ergebnis einmal explizite verifizieren:

Zunächst ist mit Rücksicht auf die Gleichung (3.10)

$$\begin{aligned} H^O \Psi_{n'm'}(X, x) &= \hat{T}_K \Psi_{n'm'}(X, x) + \left\{ \hat{T}_E + U(X, x) \right\} \Psi_{n'm'}(X, x) \\ &= \hat{T}_K \Psi_{n'm'}(X, x) + E_{n'}(X) \Psi_{n'm'}(X, x). \end{aligned}$$

Darin ist  $\hat{T}_K = \hat{P}^2/2M$ , sodaß man weiterhin hat

$$\begin{aligned} \hat{P}^2 \Psi_{n'm'}(X, x) &= \Phi_{n'}(X; x) \hat{P}^2 \phi_{n'm'}(X) \\ &+ \left[ \left\{ \hat{P}^2 \Phi_{n'}(X; x) \right\} + 2 \left\{ \hat{P} \Phi_{n'}(X; x) \right\} \hat{P} \right] \phi_{n'm'}(X). \end{aligned}$$

<sup>5</sup>Sollte diese Darlegung dem Leser als zu dunkel erscheinen, so möge er, im Sinne des Leibniz'schen „lasset uns rechnen“, die diesbezüglichen Rechnungen im Anhang B auf den Seiten 109ff verfolgen.



Deshalb findet man mit Hilfe der Gleichung (3.11) für das Matricelement (3.24) zunächst den Ausdruck

$$H_{nm,n'm'}^O = \int \phi_{nm}^*(X) \left\{ \delta_{nn'} E_n(X) + \delta_{nn'} \hat{T}_K + C_{nn'}(X, \hat{P}) \right\} \phi_{n'm'}(X) dV_X.$$

Nach Gleichung (3.10) wäre darin

$$\hat{T}_K \phi_{n'm'}(X) = \{E_{n'm'}^O - E_{n'}(X)\} \phi_{n'm'}(X) - \sum_{j'} C_{n'j'}(X, \hat{P}) \phi_{j'm'}(X),$$

sodaß sich die Terme, die die Energieeigenwerte enthalten, zu

$$\delta_{nn'} \delta_{mm'} E_{nm}^O$$

vereinfachen. Für die Matricelemente mit dem Kopplungskoeffizienten  $C$  schreiben wir kürzer

$$C_{nm,n'm'} = \int \phi_{nm}^*(X) C_{nn'}(X, \hat{P}) \phi_{n'm'}(X) dV_X. \quad (3.25)$$

Damit hat in Gleichung (3.22) die Summe über  $n', m'$  derjenigen Terme, die den Kopplungskoeffizienten  $C$  enthalten, das Ergebnis

$$\sum_{n'm'} \left\{ C_{nm,n'm'} - \delta_{nn'} \sum_{j'} C_{nm,j'm'} \right\} \psi_{n'm'}(\mathbf{r}) = 0,$$

da wir ja wegen dem Kronecker-Delta  $\delta_{nn'}$  vor dem Operator  $\hat{T}_K$  die Kopplungsoperatoren  $C_{n'j'}(X, \hat{P})$  durch  $C_{nj'}(X, \hat{P})$  ersetzen dürfen.

Das ergibt also die folgende Streugleichung am thermischem Objekt:

$$\left( \hat{T}_e - \epsilon_{nm} + \bar{U}_{nm}(\mathbf{r}) \right) \psi_{nm}(\mathbf{r}) + \sum'_{n'm'} U_{nm,n'm'}(\mathbf{r}) \psi_{n'm'}(\mathbf{r}) = 0. \quad (3.26)$$

Der Strich an der Summe soll hier bedeuten, daß der Term zu  $n = n', m = m'$  wegzulassen ist. Weiterhin sind darin

$$\epsilon_{nm} = E - E_{nm}^O \quad \text{und} \quad \bar{U}_{nm}(\mathbf{r}) = U_{nm,nm}(\mathbf{r}). \quad (3.27)$$

der Eigenwert-Parameter für die Streuung des Elektrons am thermischem Objekt und der Erwartungswert der potentiellen Energie der Wechselwirkung des Elektrons mit dem Objekt im Zustand  $|n, m\rangle$ .

Das läuft also formal auf eine einfache Umordnung der Abzählung der angeregten Zustände hinaus im Vergleich zu dem Ergebnis, welches man erhält, wenn man gleich nach einem vollständigen Orthogonal System  $\Psi(X, x)$  der Objektzustände entwickeln würde, wie wir dies im vorherigen Kapitel auch getan haben.

Aus der Gleichung (3.26) ergibt sich, daß die rein elastische Streuung an dem mittleren Potential  $\bar{U}_{nm}(\mathbf{r})$  stattfindet. Dieses Ergebnis gilt, nach Voraussetzung, am abgeschlossenen System. Wenn man zur Streuung an einem Objekt im thermischen Gleichgewicht mit der Umgebung übergeht, so kann man nicht mehr davon ausgehen, daß die Energie des Objektes konstant gleich  $E^O$  ist. Man hat dann mithin eine quantenstatistische Mittelung über ein Ensemble  $\{E^O\}$  von Anfangsenergien durchzuführen. Wenn man nun die erhaltenen Gleichungen mit der Frage durchgeht, in welcher davon  $E^O$  direkt eingeht, so stößt man

dabei auf die Gleichung (3.15).

Das heißt also: Man hat den quantenstatistischen Ensemblemittelwert über den Anfangszustand der Kernwellenfunktion  $\phi_{nm}$  mit den Gewichten

$$w_{nm} = A \exp \left\{ -\frac{E_{nm}^O}{kT} \right\} \quad \text{mit} \quad \sum_{nm} w_{nm} = 1, \quad (3.28)$$

durchzuführen [[72], §28]. Die  $E_{nm}^O$  sind darin gemäß Gleichung (3.15) die gegebenen Werte der Energie des Objektes, und  $A$  ist hier eine von  $E_{nm}^O$  unabhängige Normierungskonstante. Da sich das Objekt nun im thermischen Gleichgewicht mit dem umgebenen Medium befinden soll, treten jetzt die Energien seiner Quantenzustände mit den Wahrscheinlichkeiten  $w_{nm}$  anstatt alle mit derselben Wahrscheinlichkeit auf [[72], §28].

Man wird bemerken, daß sich dieses Ergebnis von dem des gewöhnlichen Verfahrens etwas unterscheidet.

### 3.4 Zweiter Weg: Stoß bei festen Kernlagen

Hier lautet die Form des HAMILTON-Operator des Gesamtsystems:

$$\hat{H} = \left[ \hat{T}_e + U(X, x, \mathbf{r}) + \left\{ \hat{T}_E + U(X, x) \right\} \right] + \hat{T}_K = \hat{H}_0 + \hat{T}_K. \quad (3.29)$$

#### 3.4.1 Objekt: Elektronischer Anteil

Wieder ist, wie oben, im ersten Schritt das rein elektronische Problem mit festen Kernlagen  $X$  zu lösen:

$$\left( \hat{T}_E + U(X, x) - E(X) \right) \Phi(X; x) = 0. \quad (3.30)$$

Wenn wir auch hier wieder annehmen, wir hätten dieses Problem durch das vollständige Orthogonalsystem der  $\Phi(X; x)$  gelöst, so kann man im nächsten Schritt versuchen, das Streuproblem eines schnellen Elektrons mit dem Objekt bei festen Kernlagen zu lösen.

#### 3.4.2 Streugleichung: feste Kernlagen

Wir setzen also die Reihenentwicklung

$$\Psi(X; x, \mathbf{r}) = \sum_n \Psi_n(X; x, \mathbf{r}) = \sum_n \psi_n(X; \mathbf{r}) \Phi_n(X; x) \quad (3.31)$$

mit einer den  $n$ -ten elektronischen Anregungszustand beschreibenden Zustandsfunktion  $\Phi_n$  und einer den  $n$ -ten Streuzustand des Elektrons beschreibenden Funktion  $\psi_n$  an, um das Streuproblem bei festen Kernlagen  $X$

$$\hat{H}_0 \Psi(X; x, \mathbf{r}) = \left[ \hat{T}_e + U(X, x, \mathbf{r}) + \left\{ \hat{T}_E + U(X, x) \right\} \right] \Psi(X; x, \mathbf{r}) = E_0 \Psi(X; x, \mathbf{r}) \quad (3.32)$$

zu lösen. Darin ist  $E_0$  die Gesamtenergie des Systems bei festen Kernlagen. Multiplikation von links mit  $\Phi_m^*(X; x)$  und Integration über den Konfigurationsraum der elektronischen Zustände  $x$  ergibt als zu lösende Eigenwertgleichung

$$\left( \hat{T}_e + E_n(X) - E_0 \right) \psi_n(X; \mathbf{r}) + \sum_m U_{nm}(X; \mathbf{r}) \psi_m(X; \mathbf{r}) = 0$$

bzw.

$$\{\Delta + k_n^2(X)\} \psi_n(X; \mathbf{r}) = \frac{2m\gamma}{\hbar^2} \sum_m U_{nm}(X; \mathbf{r}) \psi_m(X; \mathbf{r}) \quad (3.33)$$

mit den Kopplungskoeffizienten

$$U_{nm}(X; \mathbf{r}) = \int \Phi_n^*(X; x) U(X, x, \mathbf{r}) \Phi_m(X; x) dV_x. \quad (3.34)$$

Es ist darin<sup>6</sup>

$$k_n^2(X) = \frac{2m\gamma}{\hbar^2} \{E_0 - E_n(X)\} = k_0^2 - \frac{2m\gamma}{\hbar^2} \{E_n(X) - E_0(X)\}. \quad (3.35)$$

Wie man sieht, hängt hierbei der Betrag des Wellenvektors  $k_n$  für eine elektronische Anregung  $n > 0$  des Objektes von der momentanen Kernlage  $X$  ab. Die elastische Streustrahlung  $n = 0$  erscheint hingegen bei unverschobener Frequenz. Deshalb wird in der Folge auch die Frequenz der thermisch bedingten Streustrahlung gegenüber der Frequenz der Primärstrahlung nicht verschoben sein.

Diese beiden Umstände sind eine Folge des Aufbaus der Rechnung. Denn als ungestörte Bewegung wurde von der elektronischen Bewegung bei festen Kernlagen ausgegangen.

### 3.4.3 Objekt: Kernbewegungen

Nun fehlt uns noch eine Gleichung für die Kernbewegungen. Zu dem Ende wäre es nun verlockend, die den  $n$ -ten Streuzustand des Elektrons beschreibende Funktion  $\psi_n$  gemäß

$$\psi_n(X; \mathbf{r}) = \sum_m \psi_{nm}(\mathbf{r}) \phi_{nm}(X) \quad (3.36)$$

nach dem VONS der die Kernschwingungen beschreibenden Funktionen  $\phi_{nm}(X)$  zu entwickeln. Denn dann ist die Reihenentwicklung der Gesamtwellenfunktion die gleiche wie beim ersten Rechenweg

$$\Psi(X, x, \mathbf{r}) = \sum_{n,m} \psi_{nm}(\mathbf{r}) \phi_{nm}(X) \Phi_n(X; x). \quad (3.37)$$

Aber dieser Ansatz verträgt sich nicht mit der Gleichung (3.33), da in dieser nur die elektronischen Anregungsenergien vorkommen. Das steht im Widerspruch zur Gleichung (3.26), die die Anregungsenergien des gesamten Objektes enthält. Daher führt auch das Einsetzen des obigen Reihenansatzes für  $\psi_n$  zu keinem brauchbaren Ergebnis.

<sup>6</sup>Wenn man das Verhältnis der Impulse  $\hbar k_n$  nach und  $\hbar k_0$  vor der Streuung mit  $w(X)$  bezeichnet, dann hat man

$$k_n(X) = w(X) \cdot k_0.$$

Aus dem relativistischen Energieerhaltungssatz bekommt man für dieses Verhältnis  $w$  den Ausdruck (vergleiche Anhang A auf Seite 107)

$$w^2 = 1 - 2\gamma \frac{m\epsilon}{\hbar^2 k_0^2} + \left( \frac{\epsilon}{\hbar k_0 c} \right)^2 = 1 - \frac{m\epsilon}{\hbar^2 k_0^2} \left\{ 2\gamma - \frac{\epsilon}{mc^2} \right\}$$

worin hier der Energieverlust  $\epsilon = E_n(X) - E_0(X)$  ist. Für kleine Energieverluste des streuenden Teilchens kann man den im Energieverlust quadratischen Term vernachlässigen.

Sinnvoll ist hier nur ein Reihenansatz der Form

$$\Psi(X, x, \mathbf{r}) = \sum_n \Psi_n(X; x, \mathbf{r}) \phi_n(X). \quad (3.38)$$

Das bedeutet, daß hier die Kernbewegungen nur über den Umweg einer elektronischen Anregung beeinflußt werden können. Wie schon beim ersten Rechenweg haben wir hier einen zweiten Index bei  $\phi$  der Übersicht halber unterdrückt.

Dieser Ansatz ist nun in das Eigenwertproblem zum vollständigen HAMILTON-Operator (3.29) einzusetzen. Anschließend Multiplikation von links mit  $\Psi_n^*(X; x, \mathbf{r})$  und Integrieren über den Konfigurationsraum der  $x$  und  $\mathbf{r}$  ergibt zunächst

$$E \phi_n(X) = \sum_{n'} \int \Psi_n^*(X; x, \mathbf{r}) \left\{ \hat{H}_0 + \hat{T}_K \right\} \Psi_n(X; x, \mathbf{r}) \phi_n(X) dV_x dV_r.$$

Darin ist  $E$  die Gesamtenergie des Systems bei beweglichen Kernen. Mit Rücksicht auf die Gleichung (3.32) ergibt das weiter

$$\{E - E_0\} \phi_n(X) = \sum_{n'} \int \Psi_n^*(X; x, \mathbf{r}) \hat{T}_K \Psi_n(X; x, \mathbf{r}) \phi_n(X) dV_x dV_r.$$

Nun wird

$$\hat{P}^2 \Psi_n \phi_n = \Psi_n \hat{P}^2 \phi_n + \left[ \hat{P}^2 \Psi_n + 2 \left\{ \hat{P} \Psi_n \right\} \hat{P} \right] \phi_n,$$

sodaß weiterhin folgt

$$\{E - E_0\} \phi_n(X) = \sum_{n'} \left\{ \delta_{nn'} \hat{T}_K + F_{nn'}(X, \hat{P}) \right\} \phi_{n'}.$$

Darin ist das Matricelement  $F_{nn'}$  analog zur Gleichung (3.11) definiert, nur daß die Matrixelemente jetzt mit den  $\Psi_n(X; x, \mathbf{r})$  gebildet werden. Dies ergibt demnach als Eigenwertgleichung für die  $\phi_n$

$$\left\{ \hat{T}_K - \epsilon_n \right\} \phi_n(X) + \sum_{n'} F_{nn'}(X, \hat{P}) \phi_{n'}(X) = 0. \quad (3.39)$$

Die daraus folgenden Zustandsfunktionen  $\phi$  für die Kernbewegungen sind natürlich nicht identisch mit den aus Gleichung (3.15) folgenden Zustandsfunktionen. Bei Vernachlässigung der von dem streuenden Elektron herrührenden Terme und für kleine Auslenkungen aus der Gleichgewichtslage  $X_0$  gehen sie aber ineinander über, denn in der Gleichung (3.15) ist dann  $E_n(X) - E^O = E_n(X_0) - E^O + \&c = \epsilon_n + \&c$  mit dem  $\epsilon_n$  aus Gleichung (3.39).

### 3.5 Vereinfachung des Problems

Mit den vorstehend entwickelten Gleichungen verhält es sich nun so, wie Dirac es in dem einleitenden Zitat sagt: „Das einzige Problem liegt darin, daß [sie] viel zu schwierig zu lösen sind.“

Eine mögliche Vereinfachung des Problems besteht darin, den Einfluß des streuenden Elektrons auf die Kernbewegungen wie er durch Gleichung (3.39) zu Ausdruck kommt, bzw. den Einfluß der Kernbewegungen auf die Streuung wie er durch Gleichung (3.26) beschrieben wird, und deren wechselseitigen Rückwirkungen aufeinander zu vernachlässigen. Als

Rechtfertigung für diese Vereinfachung führen wir an, daß zum einen zu den Voraussetzungen der Streutheorie gehört, daß die Stromdichte der streuenden Teilchens so gering ist, daß im Mittel nur jeweils ein Teilchen mit dem Objekt wechselwirkt, und wir ohnehin schon als vereinfachende Annahme die Polarisationswirkung des geladenen Elektrons auf das Objekt vernachlässigt haben.

Ferner wollen wir die thermisch bedingte Bewegung der Atome nur im Nachhinein und dann auch nur für kleine Auslenkungen aus der Ruhelage  $X_0$  berücksichtigen.

Mit dieser Vereinfachung wird das Streuproblem durch die Gleichung (3.33)

$$\{\Delta + k_n^2(X)\} \psi_n(X; \mathbf{r}) = \frac{2m\gamma}{\hbar^2} \sum_m U_{nm}(X; \mathbf{r}) \psi_m(X; \mathbf{r}) \quad (3.40)$$

beschrieben. Darin werden die Matrixelemente

$$U_{nm}(X; \mathbf{r}) = \int \Phi_n^*(X; x) U(X, x, \mathbf{r}) \Phi_m(X; x) dV_x \quad (3.41)$$

mit den ungestörten elektronischen Zustandsfunktionen  $\Phi_n(X; x)$  zu festen Kernlagen  $X$  gebildet. Diese wiederum folgen aus der Gleichung

$$\left( \hat{T}_E + U(X, x) - E_n(X) \right) \Phi_n(X; x) = 0. \quad (3.42)$$

Von den  $\Phi_n(X; x)$  wurde dabei angenommen, daß sie für jeden Wert der Kernlagen  $X$  ein VONS bezüglich der Elektronenkoordinaten  $x$  bilden. Weiterhin hat man dann die Ergebnisse über die ungestörten Kernbewegungen mit den adiabatischen oder harmonischen Zustandsfunktionen gemäß

$$\left( \hat{T}_K + U_n(X) - E^O \right) \phi_n(X) = 0 \quad (3.43)$$

zu mitteln. Die darin eingehende potentielle Energie  $U_n(X)$  für die Kernbewegung ist gemäß Gleichung (3.16) definiert. Auch diese Gleichungen gehen davon aus, daß die elektronischen Zustandsfunktionen  $\Phi_n(X; x)$  ein VONS bezüglich  $x$  bilden.

Durch diese Vereinfachung ist also das Streuproblem (3.40) vollständig von dem Objektproblem entkoppelt. Den Einfluß der in realiter stattfindenden Aufheizung des Objektes durch den Energieübertrag des Elektrons auf das Objekt könnte man dann z. B. dadurch berücksichtigen, daß man die Objektzustände für die sich einstellende Gleichgewichtstemperatur bestimmt, oder mit anderen Worten: Im stationären Gleichgewichtszustand des Gesamtsystems.

Durch diese Art der Entkoppelung des Streuproblems von dem Objektproblem wird ferner die durch die thermische Bewegung der Kerne bedingte thermisch diffuse Streuung bei unverschobener Frequenz im elastischen Kanal erscheinen.

Die Gesamtwellenfunktion wird durch die Reihenentwicklung

$$\Psi(X, x, \mathbf{r}) = \sum_n \psi_n(X; \mathbf{r}) \Phi_n(X, x) = \sum_n \psi_n(X; \mathbf{r}) \phi_n(X) \Phi_n(X; x), \quad (3.44)$$

dargestellt. Darin hat man die Kernpositionen  $X$  in  $\psi_n(X; \mathbf{r})$  als adiabatische Parameter aufzufassen, sodaß also der HAMILTON-Operator  $\hat{H}$  des Gesamtsystems nur auf  $\mathbf{r}$ , aber nicht auf  $X$  wirkt.

Wie sieht es nun mit der Lösung dieser voneinander entkoppelten Gleichungssysteme aus?

Bei der die Kernbewegungen beschreibende Gleichung (3.43) könnte man daran denken, die miteinander gekoppelten Bewegungen der Kerne durch eine Molekular-Dynamik Simulation zu berechnen [2]. Oder man stellt die Lösungen in der harmonischen Approximation als ein System miteinander gekoppelter harmonischer Oszillatoren dar. Das wäre eine Gitterdynamik nach Born und von Kármán [16][17]. Um die Lösung dieses Problems ist es also gar nicht so schlecht bestellt - zumindest für den Grundzustand des Objektes. Wir werden später<sup>7</sup> sehen, daß das für unsere Zwecke auch ausreichend wäre.

Was aber die Lösung des elektronischen Problems angeht, so ist man mittlerweile ganz davon abgekommen, so etwas durch Wellenfunktionen lösen zu wollen [101], außer etwa für den Grundzustand des Objektes. Für den Grundzustand des Objektes käme auch eine Lösung mit Hilfe der Dichtefunktionaltheorie in Frage [101], aber an einen Aufbau eines VONS von Lösungen des Objektproblems ist nicht zu denken. Schon die Berechnung der ersten angeregten Zustände ist, nicht zuletzt eben wegen der Orthogonalität zum Grundzustand und untereinander, problematisch. Damit entfällt auch dieses vereinfachte Programm. Wir müssen uns hier etwas noch einfacheres ausdenken, wenn wir zu einer berechenbaren Beschreibung energiegefilterter elektronenmikroskopischer Bilder unter Berücksichtigung inelastischer Streuprozesse gelangen wollen. Die Darlegungen des nächsten Kapitels verwenden zwar zunächst auch Wellenfunktionen, um den Objektzustand zu beschreiben, aber es wird sich im Anhang B erweisen, daß eine, angesichts der Schwierigkeit der Rechnung vorgenommene, Selbstbescheidung auf die Verhältnisse des Grundzustandes, uns einen Schlüssel in die Hand geben wird, wie wir die Rechnungen über die im nächsten Kapitel dargestellten einfachen Modelle hinaus so verallgemeinern können, daß das ganze immer noch berechenbar bleibt - wenigstens für den Anteil der Streuung, der von der Wärmebewegung der Atome des Objektes herrührt. Dabei werden uns die Ergebnisse des Abschnitts 3.3.1 dieses Kapitels hilfreich zur Seite stehen, sodaß dieser Umlauf um das Problem sich als nicht umsonst erweist.

*Hiermit beende ich den kritischen [II.] Umlauf.*

*(C.F. von Weizsäcker, DesCartes und die neuzeitliche Naturwissenschaft,  
in: Die Tragweite der Wissenschaft)*

---

<sup>7</sup>Im Anhang B auf Seite 109ff.

# Kapitel 4

## Grundgleichungen der Elektronenstreuung III

*Zur Erforschung der Wahrheit bedarf es notwendig der Methode*

*(DesCartes, Regulae ad Directionem Ingenii (1629/1701))*

Wie wir in Teil I und II sahen, kann der Versuch, das Streuprobblem von den Wurzeln her zu behandeln, zu keinem praktikablen Ergebnis führen, da die Grundvoraussetzung, man hätte ein vollständiges Orthogonalsystem (VONS) für die Objekteigenfunktionen, nicht erfüllbar ist. Selbst wenn man sich vorstellt, man hätte solches VONS<sup>1</sup>, würde die astronomische Anzahl von zu berücksichtigenden möglichen Energiezuständen des Objektes das Verfahren in dieser Form unbrauchbar machen.

In diesem Kapitel werden wir zuerst die Propagation einer Elektronenwelle durch das Objekt mittels des Multisllice-Verfahrens für elastische Streuung behandeln. Unser Ziel wird es dann sein, dieses, auf elastische Streuung beschränkte Verfahren, auf den Fall möglicher inelastischer Wechselwirkungen so zu verallgemeinern, daß, falls man sich auf elastische Streuprozesse beschränkt, man wieder zu dem Multisllice-Verfahren für elastische Streuung zurückgelangt.

### 4.1 Elastische Streuung bei hohen Energien

Wenn wir nur elastische Streuung zulassen wollen, können wir das ausgehend von Gleichung (2.2) folgendermaßen erreichen: Wir wissen, daß sich in diesem Fall die Gesamtwellenfunktion als das einfache Produkt

$$\Psi(\mathbf{R}, \mathbf{r}) = \psi_0(\mathbf{r}) \cdot \Psi_0(\mathbf{R}) \equiv \psi(\mathbf{r}) \cdot \Psi(\mathbf{R})$$

schreiben läßt. Wir multiplizieren daher diese Gleichung von links mit  $\Psi(\mathbf{R})$ , integrieren über den Konfigurationsraum der Objektkoordinaten  $\mathbf{R}$  und erhalten so eine Gleichung für die Bewegung des Elektrons allein

$$\{\Delta + \mathbf{k}^2\} \psi(\mathbf{r}) = \frac{2m\gamma}{\hbar^2} U(\mathbf{r}) \psi(\mathbf{r}), \quad (4.1)$$

---

<sup>1</sup>was man sich aber nach Landau/Lifschitz [72] mangels Kenntnis eines vollständigen Satzes von, für die Konstruktion der Wellenfunktionen notwendigen, Angaben über das Objekt nicht wirklich vorstellen kann. Zu dem Ende würde es auch hinreichen zu bemerken, daß es keine vollständig vom Rest der Welt abgeschlossenen Systeme gibt, außer – vielleicht – dem kompletten Universum selber.

worin die potentielle Energie der Wechselwirkung

$$U(\mathbf{r}) = \int \Psi^*(\mathbf{R}) U(\mathbf{R}, \mathbf{r}) \Psi(\mathbf{R}) dV_R \quad (4.2)$$

ist. Die Gleichung (4.1) ist eine Gleichung für die Bewegung eines Teilchens der Ruhmasse  $m$  im Feld  $U(\mathbf{r})$  eines festen Kraftzentrums. Wenn wir hier unter  $m$  die Ruhmasse des Elektrons verstehen, dann bedeutet das, daß wir annehmen, daß die Atome unendlich schwer sind. Das hat zur Konsequenz, daß unter diesen Umständen zwar die Energie, nicht aber der Impuls erhalten bleibt.<sup>2</sup> Ferner ist die Gleichung (4.1) eine Gleichung im Laborsystem.

Wir suchen im folgenden eine Lösung dieser Gleichung unter den Bedingungen im Elektronenmikroskop. Hier haben wir es mit der Streuung eines Elektrons einer kinetischen Energie der Größenordnung 100 keV zu tun, während die potentielle Energie der Wechselwirkung von der Größenordnung 10 eV ist. Die Streuung erfolgt daher sehr stark vorwärtszentriert unter relativ kleinen Streuwinkeln.

Ein Elektron dieser Energie bewegt sich etwa mit der halben Lichtgeschwindigkeit oder etwas mehr. Die Bornsche Näherung wäre auf diesen Fall anwendbar, wenn gälte [70]

$$|U| \ll \frac{\hbar}{a} \cdot v \quad \text{bzw.} \quad \frac{2m\gamma}{\hbar^2} |U| = |V| \ll 2k/a \quad \text{und} \quad ka \gg 1.$$

Darin ist  $a$  die Reichweite des Potentials, also der Bereich, innerhalb dem es wesentlich von Null verschieden ist. Nach der Unbestimmtheitsrelation hat ein darin gefangenes Teilchen einen Impuls der Größenordnung  $\hbar/a$  und  $p \cdot v$  wäre dann nach dem Virialsatz das doppelte von dessen kinetischer Energie. Die zweite Bedingung ist eine hier vorliegende Bedingung für kleine Streuwinkel, denn bei einem charakteristischen Radius  $a$  liegt die erste Nullstelle der Amplitude der Beugungsfigur eines solchen Objektes bei Winkeln der Größe  $\lambda/a$ . Für kleine Streuwinkel muß diese Größe klein gegen 1 sein. Wenn wir für den Ursprung des Potentials etwa ein Atom annehmen, sodaß  $a$  von der Größenordnung Å ist, finden wir für diese Ungleichungen:

$$\frac{\hbar}{a} v \approx 6.582 \cdot 10^{-16} \text{ eVs} \times 2 \cdot 10^8 \text{ m/s} \div 1 \cdot 10^{-10} \text{ m} \approx 1300 \text{ eV}.$$

und

$$ka \approx 200 \cdot 10^{10} \text{ m}^{-1} \times 1 \cdot 10^{-10} \text{ m} \approx 200.$$

Demnach wäre zumindest für ein dünnes Objekt – etwa eine Atomlage eines Kristalls – die Bornsche Näherung durchaus auf diesen Fall anwendbar. Für die Streuamplitude in Bornsche Näherung gilt allerdings  $f(\mathbf{q}) = f^*(-\mathbf{q})$ . Dabei ist  $\mathbf{q}$  die Impulsänderung bei der Streuung. Sie erfüllt daher nicht die Unitaritätsrelation (2.46). Andererseits ist diese Streuamplitude die FOURIER-Transformierte von  $U$ , sodaß man  $U$  als inverse FOURIER-Transformierte der Streuamplitude in Bornsche Näherung erhalten kann, wenn man diese kennt. Dies ist z. B. der Fall für einzelne Atome. Unter Vernachlässigung der Ladungsverteilung durch die Bindung der Atome zu einem Festkörper könnte man  $U$  als Summe der Einzelpotentiale darstellen, und auf diese Weise  $U$  aus der FOURIER-Transformierten der Streuamplitude in Bornsche Näherung bestimmen.

Aus Gründen der Selbstkonsistenz wollen wir aber auf jeden Fall einen Ausdruck für die Streuamplitude, der die Unitaritätsrelation (2.46) erfüllt. Da man hierbei die potentielle Energie  $U$  als Störung ansehen kann, weil die kinetische Energie des Elektrons überall bedeutend größer als  $U$  ist, wird in erster Näherung die Ortsabhängigkeit der Wellenfunktion diejenige der freien Bewegung längs der  $z$ -Achse sein. Wir machen daher für

<sup>2</sup>Die Bewegungsrichtung des Elektrons ändert sich ja bei der Streuung.



$\psi$  den Ansatz  $\psi(\mathbf{r}) = \exp(ikz) A(\mathbf{r})$  mit einem durch die Wechselwirkung gegenüber  $\exp(ikz)$  langsam veränderlichen Amplitudenfaktor  $A$ . Einsetzen dieses Ansatzes in die Schrödingergleichung (4.1) ergibt zunächst

$$\{\Delta_\rho + \partial_z^2 + 2ik \partial_z\} A(\mathbf{r}) = \frac{2m\gamma}{\hbar^2} U(\mathbf{r}) A(\mathbf{r}) \quad (4.3)$$

mit den Zylinderkoordinaten  $\mathbf{r} = (\rho, z)$ . Wenn man in dieser Gleichung alle „Beschleunigungsterme“ streicht, erhält man für die Amplitude  $A$  die Gleichung

$$2ik \partial_z A(\mathbf{r}) = \frac{2m\gamma}{\hbar^2} U(\mathbf{r}) A(\mathbf{r}), \quad (4.4)$$

die man unmittelbar integrieren kann:

$$A(\mathbf{r}) = \exp \left\{ -i \frac{m\gamma}{k\hbar^2} \int_{-\infty}^z U(\rho, z) dz \right\}. \quad (4.5)$$

Das Herausstreichen der „Beschleunigungsterme“  $\Delta_\rho$  und  $\partial_z^2$  bedeutet physikalisch, daß die Gleichung (4.4) überhaupt keine Beugungseffekte beschreibt, sondern eine Bewegung, die in allen Teilen streng parallel zur  $z$ -Achse stattfindet. Der Ausdruck (4.5) kann daher nur für kleine Abstände  $z \ll ka^2$ , für die man diese Effekte vernachlässigen kann, gültig sein [70]. Mit den Zahlen von oben hieße das:  $z \ll 200 \text{ \AA}$ .

Man kann andererseits auch für den Anteil

$$\{\Delta_\rho + 2ik \partial_z\} A(\mathbf{r}) = 0, \quad (4.6)$$

also in Bereichen ohne Potential und bei Vernachlässigung des „Beschleunigungsterms“  $\partial_z^2$  eine Lösung finden (vgl. Kapitel 5.1):

$$A(\mathbf{r}) = A(z, \rho) = \frac{1}{i\lambda z} \int \exp \left\{ i \frac{k}{2z} (\rho - \rho')^2 \right\} A(0, \rho') d\rho'. \quad (4.7)$$

Das Vernachlässigen des Beschleunigungsterms  $\partial_z^2$  bedeutet physikalisch, daß sich die Geschwindigkeit der Bewegung in  $z$ -Richtung nicht ändert, d. h. damit vernachlässigt man insbesondere die Rückstreuung des Elektrons, die aber bei den Verhältnissen im Elektronenmikroskop nur mit exponentiell kleiner Wahrscheinlichkeit erfolgt. Das Faltungsintegral (4.7) wird FRESNEL-Propagation genannt (vgl. Kapitel 5.1). Es beschreibt näherungsweise die auftretenden Beugungseffekte. Als Bedingung dafür, daß diese klein bleiben, kann man aus dem Exponenten die oben schon zitierte Ungleichung  $z \ll ka^2$  entnehmen, denn dann tragen in dem Integral immer nur Werte aus der Umgebung  $\rho = \rho'$  bei, was anschaulich eine nahezu parallel zur  $z$ -Achse verlaufende Bewegung bedeutet.

Man kann nun den Ansatz (4.5) für die Wellenfunktion in die Integralgleichung für die Streuamplitude einsetzen. Das ist möglich, weil man den Integranden im wesentlichen nur über einen solchen Bereich zu kennen braucht, in dem die potentielle Energie  $U$  wesentlich von Null verschieden ist. Für diese Streuamplitude erhält man so aus dem exakten Integral

$$f = -\frac{1}{4\pi} \frac{2m\gamma}{\hbar^2} \int e^{-i\mathbf{k}'\mathbf{r}} U \psi dV_r$$

durch Einsetzen des Ansatzes  $\psi(\mathbf{r}) = \exp(ikz) A(\mathbf{r})$  und mit Hilfe der Beziehung (4.4) sowie unter Beachtung der Tatsache, daß in dem Ausdruck für die Richtung des Wellenvektors nach der Streuung  $\mathbf{k}' = \mathbf{k} + \mathbf{s}$  der Impulsübertrag  $\mathbf{s}$  im Rahmen der Näherung kleiner Streuwinkel senkrecht auf der  $z$ -Achse steht, den Näherungsausdruck [70]

$$f(\mathbf{s}) = \frac{k}{2\pi i} \int [S(\rho) - 1] e^{-i\mathbf{s}\rho} d\rho \quad (4.8)$$

mit

$$S(\boldsymbol{\rho}) = A(z = \infty, \boldsymbol{\rho}) = \exp \left\{ -i \frac{m\gamma}{k\hbar^2} \int_{-\infty}^{+\infty} U(\boldsymbol{\rho}, z) dz \right\}. \quad (4.9)$$

Der Ausdruck (4.8) erfüllt die Unitaritätsrelation (2.46), wie im Anhang C gezeigt wird.

## 4.2 Multislice-Verfahren für elastische Streuung

Die obigen Zahlenwerte für die Ungleichungen sind eigentlich recht moderat, sodaß man zu dem Schluß kommen könnte, die Gleichung (4.5) würde auch für solche Kristalldicken gelten, wie sie in der hochauflösenden Elektronenmikroskopie verwendet werden. Allerdings gibt es bei Kristallen eine von diesen Abschätzungen bislang unberücksichtigt gebliebene Besonderheit. In einem Kristall liegen die Atome in einer (streng) periodischen Anordnung vor. Insbesondere bei einer Einstrahlrichtung längs einer Zonenachse kann es so zu einer recht beträchtlichen konstruktiven Interferenz der Elektronenwellen schon nach wenigen Atomlagen kommen. Man muß also hier die durch die potentielle Energie  $U$  verursachten Phasenschiebungen gemäß Gleichung (4.5) und die durch (4.7) beschriebenen Interferenzeffekte gleichzeitig berücksichtigen. Es ist aber nach wie vor die Wahrscheinlichkeit der Rückstreuung der Elektronen klein. Man kann daher in der Gleichung (4.3) den Term  $\partial_z^2$  immer noch fortlassen. Es ist damit jetzt die Gleichung

$$\{\Delta_\rho + 2ik \partial_z\} A(\mathbf{r}) = \frac{2m\gamma}{\hbar^2} U(\mathbf{r}) A(\mathbf{r}) \quad (4.10)$$

zu lösen. Dies kann man zumindest formal leicht bewerkstelligen:

$$A(z, \boldsymbol{\rho}) = \exp \left\{ \frac{i}{2k} \int_{-\infty}^z \left[ \Delta_\rho - \frac{2m\gamma}{\hbar^2} U(\boldsymbol{\rho}, z') \right] dz' \right\} A(-\infty, \boldsymbol{\rho}). \quad (4.11)$$

Bei der konkreten Auswertung hat man jedoch das Problem, daß der Laplace-Operator  $\Delta_\rho$  nicht mit  $U$  kommutiert. Für Bereiche, in denen  $U$  identisch verschwindet, ist die Operator-Gleichung

$$A(z, \boldsymbol{\rho}) = \exp \left\{ \frac{iz}{2k} \Delta_\rho \right\} A(0, \boldsymbol{\rho}). \quad (4.12)$$

identisch mit der Gleichung (4.7), wovon man sich durch Übergang zur fouriertransformierten Gleichung bezüglich der lateralen Komponenten  $A(z, \mathbf{s}) = \exp \{-iz\mathbf{s}^2/2k\} \cdot A(0, \mathbf{s})$  und anschließender Rücktransformation in den Ortsraum leicht überzeugt. Wir konnten hierbei die untere Integrationsgrenze durch 0 ersetzen, da eine ebene Welle bei der FRESNEL-Propagation über eine Distanz  $z$  eine um die Distanz  $z$  verschobene ebene Welle ergibt: *Eine ebene Welle bleibt bei der FRESNEL-Propagation eine ebene Welle.*<sup>3</sup> Die weitere Auswertung von (4.11) in einem Gebiet, in dem  $U$  nicht verschwindet, ist nur näherungsweise möglich. Bei der Multislice-Approximation dieser Operatorgleichung betrachtet man ein in seiner Ausdehnung längs der  $z$ -Achse beschränktes Objekt (Abbildung 4.1). Man unterteilt das Objekt dann z. B. in  $N$  Scheibchen einer Dicke<sup>4</sup>  $d \approx 2a$ . Man stellt sich dann

<sup>3</sup>Man vergleiche hierzu auch die Diskussion der Interpretation dieses Ergebnisses bezüglich der Güte der FRESNEL-Propagation am Schluß von Kapitel 5.1.

<sup>4</sup>Hierbei nehme ich zur Vereinfachung der Notation an, daß alle Scheibchen gleich dick sind.

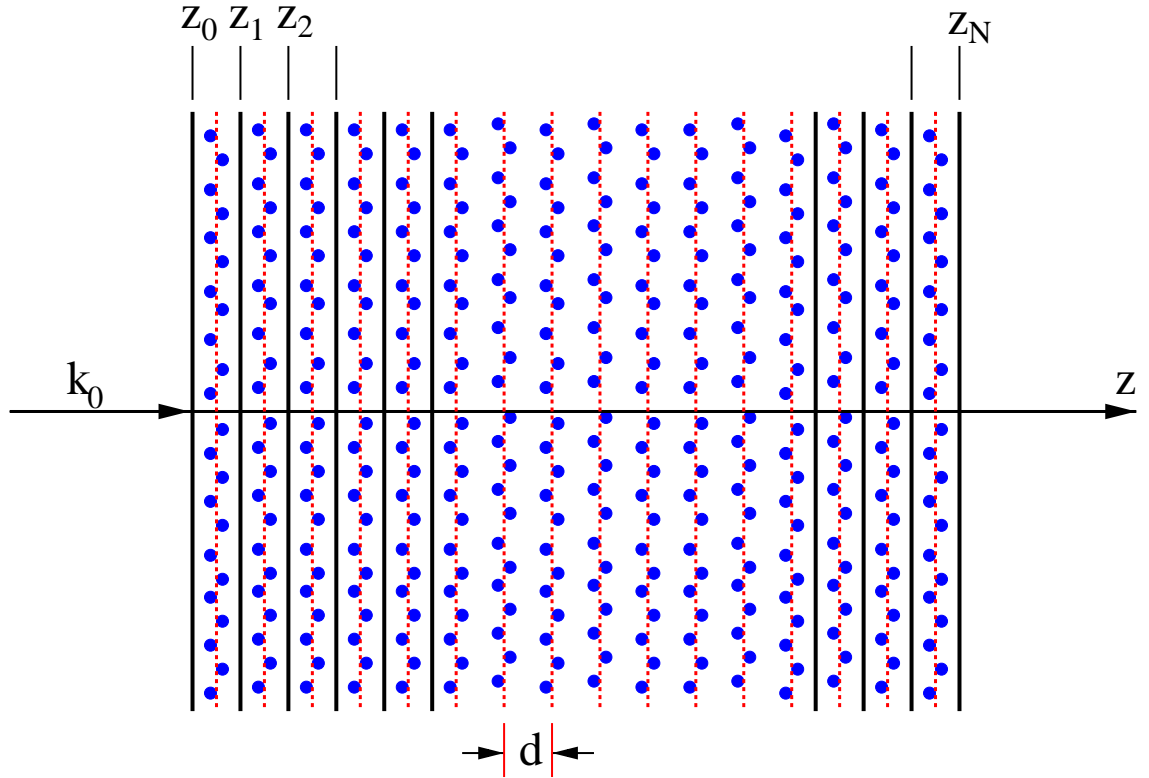


Abbildung 4.1: Schema des Multislice-Verfahrens für elastische Streuung. Jeder Punkt repräsentiert ein Atom. Das Potential wird auf die Mittlebene (rot) eines Scheibchens der Dicke  $d$  projiziert. Daß diese Dicke für alle  $N$  Scheibchen, in die das Objekt hier unterteilt wurde, dieselbe ist, ist keine notwendige Voraussetzung des Verfahrens. Es könnte auch jedes Scheibchen eine andere Dicke  $d_j$  haben.

die Propagation der Elektronenwelle durch das Objekt so vor, daß in jeder Mittlebene die Elektronenwelle abrupt eine Phasenschiebung

$$T_j(\boldsymbol{\rho}) = \exp \left\{ -i \frac{m\gamma}{k\hbar^2} \int_{z_j}^{z_{j+1}} U(\boldsymbol{\rho}, z) dz \right\}, \quad z_{j+1} = z_j + d \quad (4.13)$$

erfährt und von einer dieser Mittlebenen zur nächsten gemäß

$$\hat{F}(d, \boldsymbol{\rho}) = \exp \left\{ \frac{id}{2k} \Delta_{\rho} \right\} \quad (4.14)$$

über eine Strecke  $d$  propagiert wird. Das ist mathematisch äquivalent zu der symmetrischen Entwicklung nach einem kleinen Parameter

$$\exp \{ \hat{\alpha}\epsilon + \hat{\beta}\epsilon \} = \exp \{ \hat{\alpha}\epsilon/2 \} \exp \{ \hat{\beta}\epsilon \} \exp \{ \hat{\alpha}\epsilon/2 \} + \&c.$$

Man approximiert also die Mehrfachstreuung durch eine Operatoraufspaltung in Transmission  $\hat{\beta}\epsilon$  und FRESNEL-Propagation  $\hat{\alpha}\epsilon/2$ .

Mithin: Bei der Multislice-Approximation der Operatorgleichung (4.11) berechnet man die 2-dimensionale Amplitude  $A$  der Wellenfunktion in einer Ebene  $z_{j+1}$  gemäß der iterativen Vorschrift

$$A(z_{j+1}, \boldsymbol{\rho}) = \hat{F}(d/2, \boldsymbol{\rho}) \left\{ T_j(\boldsymbol{\rho}) \left[ \hat{F}(d/2, \boldsymbol{\rho}) A(z_j, \boldsymbol{\rho}) \right] \right\}. \quad (4.15)$$

Der FRESNEL-Propagator  $\hat{F}$  propagiert zunächst die Amplitude  $A$  der Ebene  $z_j$  zur Mittelebene  $z_j + d/2$ . Dort erfährt sie eine abrupte Phasenschiebung und wird anschließend von dem zweiten FRESNEL-Propagator zur nächsten Ebene  $z_{j+1}$  propagiert. Gemäß dieser Berechnungsvorschrift durchläuft man dann alle  $N$  Scheibchen bis zur Austrittsebene  $z_N$  des Objektes.<sup>5</sup> Zum Schluß ist die Amplitude  $A(z_N, \boldsymbol{\rho})$  dann noch mit  $\exp(ikz)$  zu multiplizieren, um die vollständige Wellenfunktion  $\psi(z_N, \boldsymbol{\rho})$  der Austrittsebene  $z_N$  des Objektes zu erhalten. Da dieser Faktor aber bei der Bildung des Betragsquadrates immer herausfällt, läßt man ihn gewöhnlich ganz weg und bezeichnet die Amplitude  $A$  als jetzt bloß 2-dimensionale Wellenfunktion mit  $\psi$ .

Bei der praktischen Implementierung [66][67][120] dieses Verfahrens nimmt man gewöhnlich an, daß die Dicke eines Scheibchens einerseits so hinreichend dünn ist (eine Atomlage bei Kristallen, mittenzentriert), daß die durch die Transmissionsfunktion (4.13) beschriebene abrupte Phasenschiebung die Verhältnisse gut beschreibt, daß sie aber andererseits hinreichend groß ist, damit man darin die Integralgrenzen durch  $\pm\infty$  ersetzen darf. Wegen dieses letzten Punktes darf man daher in (4.15) bei den praktischen Implementationen dieses Verfahrens die Scheibchendicke  $d$  nicht gegen 0 gehen lassen, in der Hoffnung dadurch genauere Resultate zu erhalten. Ohne diese zusätzliche Approximation würde aber der Grenzwert  $d \rightarrow 0$  der Gleichung (4.15) eine exakte Lösung der paraxialen Näherung der Schrödingergleichung (4.10) darstellen. Der Grund für diese zusätzliche Approximation ist, daß man dann die Phasenschiebung

$$\chi_j(\boldsymbol{\rho}) = -\frac{m\gamma}{k\hbar^2} \int_{-\infty}^{+\infty} U_j(\boldsymbol{\rho}, z) dz \quad (4.17)$$

bei Kenntnis der Bornschen Streuamplitude

$$f_j^B(\mathbf{q} \stackrel{!}{=} \mathbf{s}) = -\frac{k}{2\pi} \frac{m\gamma}{\hbar^2} \int U_j(\boldsymbol{\rho}, z) e^{-i\mathbf{s}\boldsymbol{\rho}} d\boldsymbol{\rho} dz, \quad \mathbf{s} \perp \mathbf{e}_z \rightsquigarrow \mathbf{s}\mathbf{r} = \mathbf{s}\boldsymbol{\rho} \quad (4.18)$$

gemäß

$$\chi_j(\boldsymbol{\rho}) = \frac{2\pi}{k} \int e^{-i\mathbf{s}\boldsymbol{\rho}} f_j^B(\mathbf{s}) \frac{d\mathbf{s}}{(2\pi)^2} = \frac{2\pi}{k} \hat{\mathcal{F}}^- f_j^B(\mathbf{s}) \quad (4.19)$$

berechnen kann. Darin wurde  $f_j^B(-\mathbf{s}) = f_j^B(\mathbf{s})$  genutzt, um die Definition der Streuamplitude an die gegenwärtig verwendete Vorzeichenkonvention der FOURIER-Transformation anzupassen. In diese Formel ist ferner rechter Hand die kinematikkorrigierte  $\{\gamma\}$  Bornsche oder Elektronen-Streuamplitude einzusetzen. Der Index  $j$  an  $U$  und  $f^B$  bedeutet, daß man

---

<sup>5</sup>Da der FRESNEL-Propagator  $\hat{F}$  die Eigenschaft

$$\hat{F}(d/2, \boldsymbol{\rho}) \hat{F}(d/2, \boldsymbol{\rho}) = \hat{F}(d, \boldsymbol{\rho})$$

hat, kann man in den mittleren Scheibchen je zwei dieser FRESNEL-Propagationen zu einer einzigen mit doppelter Schrittweite zusammenfassen. Wenn die Eintrittswelle eine ebene Welle ist, entfällt zusätzlich die erste FRESNEL-Propagation über die Distanz  $d/2$ . Auf die letzte dieser FRESNEL-Propagationen um  $d/2$  kann man ebenfalls verzichten, da man sie bequem als einen kleinen Defokus bei den Abbildungsfehlern der Objektivlinse berücksichtigen kann (s. Kapitel 5.2). Das bedeutet, daß man auf die separate Berechnung eines FRESNEL-Propagator mit halber Schrittweite ( $d/2$ ) verzichten kann. Damit vereinfacht sich das Multislice-Verfahren (4.15) zu der konventionellen Formulierung

$$A(z_{j+1}, \boldsymbol{\rho}) = \hat{F}(d, \boldsymbol{\rho}) \{T_j(\boldsymbol{\rho}) A(z_j, \boldsymbol{\rho})\} . \quad (4.16)$$

Obwohl hierbei im ersten Schritt die Amplitude  $A$  mit der Transmissionsfunktion  $T$  multipliziert wird, ist dabei zu beachten, daß die Atompotentiale dabei auf die Mittelebene des Scheibchens projiziert werden.

bei der Berechnung dieser Größen nur die Atome im  $j$ -ten Scheibchen zu berücksichtigen hat. Der Index  $j$  ist dabei aus dem Intervall  $[0, \dots, N - 1]$ , sodaß das Objekt insgesamt in  $N$  Scheibchen unterteilt ist (Abbildung 4.1).

Wenn man das ganze Objekt nur durch eine einzige solche Transmissionsfunktion  $T(\boldsymbol{\rho}) = S(\boldsymbol{\rho})$  beschreibt, ist das die Eikonalnäherung von Molière [88], bzw. die Glaubersche Hochenergie-Näherung [45][70]. L. Schiff leitet diese Näherung mit einigen Korrekturen aus der Bornschen Reihe ab [113].

Die Implementierung dieses Multislice-Verfahrens [66][67][120] stellen die potentielle Energie  $U$  als Summe der potentiellen Energien einzelner freier Atome dar. Wie wir im vorgehenden Kapitel sahen, bleibt einem praktisch auch nicht viel anderes übrig, da die Rechenzeiten für eine realistischere Kalkulation, die Ladungsumverteilungseffekte durch die Wechselwirkung der Atome im Festkörper berücksichtigt, viel zu groß wären. Für freie Atome gibt es tabellierte Werte [30][67][11] für die Elektronen-Streuamplitude  $f^B$ . Es werden dann entweder diese Tabellenwerte direkt verwendet [66][67] oder ein analytischer Fit durch jene [120]. Die meist verwendeten analytischen Fit-Funktionen für die Elektronen-Streuamplitude  $f^B$  sind der Gauss-Fit von Doyle-Turner [30]

$$f_{DT}^B(\mathbf{s}) = \sum_{j=1}^4 a_j e^{-b_j s^2}, \quad s = 4\pi \frac{\sin(\vartheta/2)}{\lambda} \leq 2 \cdot 4\pi \text{ \AA}^{-1} \quad (4.20)$$

bzw. der Fit von Weickenmeier [128]

$$f_W^B(\mathbf{s}) = \sum_{j=1}^4 a_j \frac{1 - e^{-b_j s^2}}{s^2}, \quad s \leq 6 \cdot 4\pi \text{ \AA}^{-1}. \quad (4.21)$$

Die Koeffizienten  $a_j$  und  $b_j$  sind natürlich in beiden Fällen voneinander verschieden. Ferner enthalten die  $a$ -Koeffizienten den von der Beschleunigungsspannung des Elektrons abhängigen, relativistischen Faktor  $\gamma$  nicht. Sie sind also noch damit zu multiplizieren. Angegeben ist ferner derjenige Bereich der Impulsüberträge innerhalb dessen die Koeffizienten an die Tabellenwerte angepaßt wurden. Der Fit von Weickenmeier hat darüber hinaus die richtige asymptotische Form (Mott-Formel, [[119], 398]), sodaß man hier ggf. für größere Impulsüberträge interpolieren kann.

Die Phasenschiebung (4.17) wird nun mittels des Faltungstheorems für die FOURIER-Transformation berechnet:

$$\chi_j(\boldsymbol{\rho}) = \sum_{l=1}^{A_j} \chi(\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}_l) = \sum_{l=1}^{A_j} \hat{\mathcal{F}}^- \left\{ f^B(\mathbf{s}) \cdot \hat{\mathcal{F}} \delta(\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}_l) \right\} = \hat{\mathcal{F}}^- \left\{ f^B(\mathbf{s}) \cdot P_j(\mathbf{s}) \right\}. \quad (4.22)$$

Also im wesentlichen durch Multiplikation mit einer Phasenschiebungsmatrix  $P_j(\mathbf{s})$ . Hierbei habe ich zwecks Vereinfachung der Notation angenommen, daß alle  $A_j$  Atome des Scheibchens  $j$  identisch sind. Sonst müßte man eine weitere Summe über die verschiedenen Atomsorten eines Scheibchens ergänzen, was der Übersicht abträglich ist.

Auf die Details und Tücken einer konkreten Implementierung des durch (4.22) angedeuteten Algorithmus werde ich in Kapitel 6.8 genauer eingehen. Es wird sich im folgendem ferner zeigen, daß zur Behandlung inelastischer Streuprozesse eine immense Anzahl elastischer Multislice-Propagationen durch das Objekt erforderlich ist. Dieser Teil dominiert somit die erforderlichen Rechenzeiten. Daher beschreibe ich im Anhang E die wesentlichen Schritte zu einer effizienten Implementierung des elastischen Multislice-Verfahrens (4.15)

bzw. (4.16). Die dortigen Überlegungen zeigen, daß die konventionellen Überlegungen hierzu [67] bei weitem nicht ausreichen, um bei den heutigen Rechnern Durchsatz zu erzielen. Der naive Glaube, die durch die mittlerweile ja schon jenseits von 1 GHz liegende Taktrate des Prozessors angedeutete Rechenleistungssteigerung heutiger Rechner allein wird das schon richten, richtet es jedenfalls nicht so schnell, wie man denken könnte.<sup>6</sup> Im Anhang F werden einige weitere Dinge angesprochen, die bei der numerischen Umsetzung zu beachten sind.

### 4.3 Inelastische Streuung bei hohen Energien

*Ein Argument ist eine Überlegung, die für eine zunächst zweifelhafte Sache Vertrauen erzeugt.*

*(Cicero, Boetius, Bradwardine &etc)*

Die Gültigkeit des oben dargestellten Multislice-Verfahrens für elastische Streuung setzt voraus, daß

- (a) die kinetische Energie des Elektrons sehr viel größer ist als die potentielle Energie der Wechselwirkung des Elektrons mit dem Objekt und
- (b) die Streuung des Elektrons im wesentlichen in kleine Winkel erfolgt, sodaß nur kleine Änderungen des Impulses des Elektrons auftreten.

Dabei wurde der letzte Punkt so gehandhabt, daß man etwaige Änderungen des Impulses in  $z$ -Richtung in der Rechnung vollkommen ignorierte.

Im Hinblick auf eine Verallgemeinerung dieses Verfahrens auf inelastische Streuprozesse bedenken wir den Umstand, daß bei der Streuung von Elektronen einer kinetischen Energie der Größenordnung 100 keV der ganz überwiegende Teil der Streuprozesse mit einem kleinen Energieübertrag auf das Objekt verbunden<sup>7</sup> ist. D. h. wir nehmen jetzt zu den obigen Annahmen hinzu, daß

- (c) die auf das Objekt übertragene Energie klein gegenüber der kinetischen Energie des Elektrons ist.

Bei rein elastischer Streuung ist die letzte Bedingung immer erfüllt, da in diesem Fall (im Schwerpunktsystem) kein Energieverlust auftritt.

Wenn wir nun die Hierarchie der Geschwindigkeiten (3.6)

$$v_e \gg v_E \gg v_K$$

betrachten und die Behandlung von Punkt (b) beim Multislice-Verfahren für elastische Streuung, so bietet sich die folgende praktikable Verallgemeinerung dieses Verfahrens auf inelastische Streuprozesse an:

---

<sup>6</sup>Ich rede hier über Rechenzeiten, die für realistische Probleme leicht einen Monat übersteigen können (CPU-Zeit auf einer AlphaStation 500/500 mit  $\alpha$ -21164a CPU mit 500 MHz Prozessortakt und 8 MByte L<sub>3</sub>-Cache). Dies sind die Zeiten für die optimierte Implementation des Programms. Würde man eine, im Vergleich gar nicht mal langsame, Implementation des Multislice-Verfahrens für die elastische Streuung wie Kirkland [66][67] wählen, müßte man mit wenigstens viermal längeren Programmlaufzeiten rechnen, und im Vergleich zu anderen Implementationen [28][120] sogar sechs- bis zehnmal. Das allein würde das Multislice-Verfahren für die inelastische Streuung noch auf Jahre hinaus unpraktikabel machen.

<sup>7</sup>Davon überzeugt man sich durch einen Blick auf ein Elektronen-Energie-Verlust-Spektrum für die relevanten Probendicken von einigen 10 nm bis etwa 100 nm und Strahlenergien von etwa 200 keV.

Wenn man den Streuprozess des Elektrons mit dem Objekt als so rasant ablaufend ansieht, daß dem Objekt während der Streuung keine Zeit zum Reagieren bleibt („short collision time approximation“ [131]), dann ist das, im Grenzfall verschwindender Kollisionszeit, identisch mit einer solchen Wechselwirkung eines Elektrons mit dem Objekt, daß dabei überhaupt keine Energie- und Impulsüberträge auf das Objekt auftreten - also einer Wechselwirkung mit einem statischen Potential. Diese Approximation, bei der man bei der inelastischen Wechselwirkung mit dem Objekt die Energieüberträge auf das Objekt bzw. den Energieverlust des Elektrons bei der Rechnung vernachlässigt, heißt daher auch die statische Approximation [49][99]. Auf den ersten Blick erscheint das nun als ein Widerspruch in sich, kann doch bei der Wechselwirkung mit einer statischen Coulomb-Ladungsverteilung nur elastische Streuung auftreten. Aber spätestens die Art, wie im Raman-Compton-Modell die zum Primärstrahl inkohärente Streustrahlung berechnet wird, zeigt, daß der obige Widerspruch nur scheinbarer Natur ist [20]. A. Compton berechnet die Intensität der Röntgenstreustrahlung von Atomen dadurch, daß er die Elektronen des Atoms zunächst in festen aber zufälligen Positionen als ruhend annimmt und danach die erhaltenen Ausdrücke statistisch mittelt. Das so erhaltene Ergebnis hatte dieselbe Form wie eine quantenmechanische Rechnung von G. Wentzel [20], wobei aber aus der quantenmechanischen Rechnung ein bestimmter Ausdruck für die Verteilungsfunktion der Koordinaten der Atomelektronen folgt. Dies ist im Prinzip auch die in der Einleitung zum Kapitel 3 erwähnte, klassische Berechnungsweise von Debye. Die wesentliche physikalische Voraussetzung für diese Berechnungsweise ist, daß die Röntgenstrahlung bzw. das schnelle Elektron während des Streuprozesses nur kleine Energie- und Impulsüberträge auf das Objekt überträgt [45][70], bzw. daß im Falle der Röntgenstrahlung die Frequenz der Wärmeschwingungen der Atome unvergleichlich viel geringer als die der einfallenden Röntgenstrahlung ist. Das ist aber gerade unsere obige dritte Annahme (c). Daher kann man das Problem der inelastischen Elektronenstreuung so behandeln, wie wenn das Elektron mit einer statischen Coulomb-Ladungsverteilung  $V(\mathbf{R}, \mathbf{r}) = 2m\gamma/\hbar^2 \cdot U(\mathbf{R}, \mathbf{r})$  wechselwirkt, und die so erhaltenen Ausdrücke hinterher mit der Wahrscheinlichkeitsverteilung der Objektkoordinaten  $\mathbf{R}$  im Grundzustand des Objektes mittelt. [70]<sup>8</sup>

Dementsprechend setzen wir nun die Gesamtwellenfunktion als Produkt

$$\Psi(\mathbf{R}, \mathbf{r}) = \psi(\mathbf{R}; \mathbf{r}) \cdot \Psi(\mathbf{R}) \quad (4.23)$$

an, worin in der Wellenfunktion  $\psi(\mathbf{R}; \mathbf{r})$  des streuenden Elektrons die Objektkoordinaten (Kerne + Elektronen)  $\mathbf{R}$  die Rolle von Parametern spielen, sodaß in der Gleichung (2.2) der Hamilton-Operator  $\hat{H}_O$  des Objektes nur auf die Objektwellenfunktion wirkt, nicht aber auf die Wellenfunktion des Elektrons.<sup>9</sup> Dieser Ansatz ergibt für das Elektron die Gleichung

$$\{\Delta + \mathbf{k}^2\} \psi(\mathbf{R}; \mathbf{r}) = \frac{2m\gamma}{\hbar^2} U(\mathbf{R}, \mathbf{r}) \psi(\mathbf{R}; \mathbf{r}). \quad (4.24)$$

Die weitere Rechnung ist daher analog zur obigen Rechnung für die elastische Streuung. Wir müssen lediglich überall die Parameter  $\mathbf{R}$  ergänzen und die potentielle Energie der Wechselwirkung  $U(\mathbf{r})$  nach Gleichung (4.2) durch die statische Coulomb-Wechselwirkungsenergie  $U(\mathbf{R}, \mathbf{r})$  ersetzen.

Die Kleinwinkelapproximation dieser Bewegungsgleichung des Elektrons ist

$$\{\Delta_\rho + 2ik \partial_z\} A(\mathbf{R}; \mathbf{r}) = \frac{2m\gamma}{\hbar^2} U(\mathbf{R}, \mathbf{r}) A(\mathbf{R}; \mathbf{r}) \quad (4.25)$$

<sup>8</sup>Das bedeutet physikalisch, daß einem Atomelektron eine bestimmte Position im Atomverband nur mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit zukommt. Würde man sich dagegen die Atomelektronen über das Atom als kontinuierlich verteilt vorstellen, dann würde tatsächlich keine inkohärente oder inelastische Streuung auftreten können. . . .

<sup>9</sup>Vgl. den Artikel von Pauli, S. 162 in [50].

und hat die formale Lösung

$$A(\mathbf{R}; z, \rho) = \exp \left\{ \frac{i}{2k} \int_{-\infty}^z \left[ \Delta_\rho - \frac{2m\gamma}{\hbar^2} U(\mathbf{R}, z', \rho) \right] dz' \right\} A(\mathbf{R}; -\infty, \rho). \quad (4.26)$$

Bei der Multislice-Approximation der Lösung dieser Operatorgleichung wird sich der Ausdruck für den FRESNEL-Propagator  $\hat{F}$  nicht ändern. Für die Phasenschiebung  $\chi_j$  und die Transmissionsfunktion  $T_j$  des  $j$ -ten Scheibchens erhalten wir völlig analog die Ausdrücke

$$\chi_j(\mathbf{R}; \rho) = -\frac{m\gamma}{k\hbar^2} \int_{-\infty}^{+\infty} U_j(\mathbf{R}, \rho, z) dz \quad \& \quad T_j(\mathbf{R}; \rho) = \exp \{ i \chi_j(\mathbf{R}; \rho) \}, \quad (4.27)$$

die jetzt die Objektkoordinaten  $\mathbf{R}$  als Parameter enthalten. Mit dem Index  $j$  wird hier angedeutet, daß man sich in diesen Formeln dabei auf solche  $\mathbf{R}$  zu beschränken hat, die auch tatsächlich in das  $j$ -te Scheibchen fallen. Man kann das auch durch den Ausdruck  $\mathbf{R} \in \bigcup_{l \in [1, \dots, A]} \{ \mathbf{R}_l \mid \mathbf{R}_l \cdot \mathbf{e}_z \in [z_j, z_j + d] \} =: \{ \mathbf{R}_j \}$  beschreiben, worin  $A$  die Anzahl aller Atome im Objekt bedeutet:

$$A := \left| \bigcup_{j \in [0, \dots, N-1]} \{ A_j \} \right| = \sum_{j=0}^{N-1} \sum_{x \in \{ A_j \}} 1 = \sum_{j=0}^{N-1} |\{ A_j \}| = \sum_{j=0}^{N-1} A_j.$$

Wenn wir annehmen, daß in der Zustandsfunktion des Objektes  $\Psi(\mathbf{R})$  keine Korrelationen über die Scheibchengrenzen hinweg enthalten sind, dann faktorisiert diese Funktion in das Produkt

$$\Psi(\mathbf{R}) = \prod_{j=0}^{N-1} \Psi_j(\mathbf{R}). \quad (4.28)$$

Da in der Hochenergie-Näherung wegen der Vernachlässigung des Terms  $\partial_z^2$  keine Rückstreuung vorkommen kann, sind damit etwaige Korrelationen wie z. B. Gitterschwingungen auf die einzelnen Scheibchen beschränkt, und wir können die zu bildenden Mittelwerte für jedes Scheibchen getrennt berechnen. Man würde dann den Ausdruck

$$\bar{T}_j(\rho) = \int |\Psi_j(\mathbf{R})|^2 T_j(\mathbf{R}; \rho) dV_R = \int |\Psi_j(\mathbf{R})|^2 \exp \{ i \chi_j(\mathbf{R}; \rho) \} dV_R \quad (4.29)$$

zu berechnen haben. Für die Berechnung des Mittelwertes dieser Exponentialfunktion ist es günstig

$$\exp \{ i \chi_j(\rho) \} \cdot \int |\Psi_j(\mathbf{R})|^2 \exp \{ i (\chi_j(\mathbf{R}; \rho) - \chi_j(\rho)) \} dV_R$$

zu schreiben, mit der mittleren Phasenschiebung

$$\chi_j(\rho) = \int |\Psi_j(\mathbf{R})|^2 \chi_j(\mathbf{R}; \rho) dV_R = -\frac{m\gamma}{k\hbar^2} \int_{-\infty}^{+\infty} U_j(\rho, z) dz. \quad (4.30)$$

Es ist nämlich

$$\langle e^{i(\alpha - \bar{\alpha})} \rangle = \exp \left\{ \sum_{n=2}^{\infty} \frac{i^n}{n!} K_n(\alpha - \bar{\alpha}) \right\} = \exp \left\{ -\frac{1}{2} K_2(\alpha - \bar{\alpha}) \right\} \cdot \&c, \quad (4.31)$$



worin die Kumulanten  $K_n$  Polynome aus Mittelwerten von  $\alpha - \bar{\alpha}$  sind [45]. Die zweite Kumulante

$$K_2(\alpha - \bar{\alpha}) = \langle (\alpha - \bar{\alpha})^2 \rangle \quad (4.32)$$

ist dabei die Varianz der zu mittelnden Größe  $\alpha$ . Die dritte Kumulante  $K_3 = \langle (\alpha - \bar{\alpha})^3 \rangle$  würde dabei übrigens wegen  $i^3 = -i$  direkt die Phasenschiebung  $\chi(\boldsymbol{\rho})$  und damit den elastischen Anteil der Streuung modifizieren.

In Anbetracht des Umstandes, daß die zu mittelnde Größe selbst schon eine Näherung ist, beschränken wir uns bei der Berechnung des Mittelwertes (4.29) auf die Entwicklung in 2-ter Ordnung und führen die Abkürzung

$$\mu_2^j(\boldsymbol{\rho}) := \int |\Psi_j(\mathbf{R})|^2 \{ \chi_j(\mathbf{R}; \boldsymbol{\rho}) - \chi_j(\boldsymbol{\rho}) \}^2 dV_R \quad (4.33)$$

ein. Damit finden wir für die Transmissionsfunktion den Ausdruck

$$\bar{T}_j(\boldsymbol{\rho}) = \exp \left\{ i \chi_j(\boldsymbol{\rho}) - \frac{1}{2} \mu_2^j(\boldsymbol{\rho}) \right\}. \quad (4.34)$$

Hierin würde der zweite Term verschwinden, wenn der lokale Wert der Phasenschiebung  $\chi_j(\mathbf{R}; \boldsymbol{\rho})$  überall gleich dem Mittelwert  $\chi_j(\boldsymbol{\rho})$  der Phasenschiebung wäre. Das gilt auch für alle höheren Kumulanten:  $K_n(0) = 0$ . Wir kommen so zu dem Multislice-Verfahren für elastische Streuung zurück. Der zweite Term führt zu einer exponentiellen Dämpfung der Amplitude. Er läßt sich als Ausdruck für ein Absorptionspotential deuten, welches die Amplitude der elastischen Streuwelle in dem Maße senkt, wie inelastische Streuprozesse zu einem „Verschwinden“ aus dem elastischen Kanal führen. Dieser Rechenweg führte uns also insofern zu einer Verallgemeinerung des Multislice-Verfahrens für die elastische Streuung, als wir jetzt auch den Einfluß der inelastischen Streuung auf die Intensität der elastischen Streuwelle beschreiben können. Aber die inelastischen Streuanteile haben wir damit nicht erhalten. Das liegt daran, daß wir bei dem obigen Rechenweg einen Fehler gemacht haben: Wir haben nämlich dabei angenommen, daß dem Elektron nach der Streuung eine Wellenfunktion zukommt und haben dann die Amplitude dieser Wellenfunktion über die Wahrscheinlichkeitsverteilung der Objektkoordinaten  $\mathbf{R}$  gemittelt. Auf diese Weise bekommen wir aber nur den zum Nullstrahl kohärenten Anteil der Bildintensität.

## 4.4 Multislice-Verfahren für inelastische Streuung

Da wir im folgenden nicht bloß den kohärenten sondern auch den inkohärenten Anteil der Streustrahlung erhalten wollen, setzen wir den Näherungsausdruck für die Gesamtwellenfunktion in die Dichtematrix

$$\varrho(z; \boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}') = \int |\Psi(\mathbf{R})|^2 \psi^*(\mathbf{R}, z; \boldsymbol{\rho}') \psi(\mathbf{R}, z; \boldsymbol{\rho}) dV_R \quad (4.35)$$

ein. Das ergibt

$$\begin{aligned} \varrho(z; \boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}') &= \int dV_R |\Psi(\mathbf{R})|^2 \times \\ &\exp \left\{ \frac{i}{2k} \int_0^z \left[ \Delta_{\rho'} - \frac{2m\gamma}{\hbar^2} U(\mathbf{R}, v, \boldsymbol{\rho}') \right] dv \right\}^* A^*(\mathbf{R}; 0, \boldsymbol{\rho}') \times \\ &\exp \left\{ \frac{i}{2k} \int_0^z \left[ \Delta_{\rho} - \frac{2m\gamma}{\hbar^2} U(\mathbf{R}, u, \boldsymbol{\rho}) \right] du \right\} A(\mathbf{R}; 0, \boldsymbol{\rho}). \end{aligned} \quad (4.36)$$

oder, da wir die Amplitude  $A^*(\mathbf{R}; 0, \boldsymbol{\rho}')$  an dem zweiten Operator vorbeiziehen können,

$$\begin{aligned} \varrho(z; \boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}') &= \int dV_R |\Psi(\mathbf{R})|^2 \times \\ &\exp \left\{ \frac{i}{2k} \int_0^z \left[ \Delta_{\rho'} - \frac{2m\gamma}{\hbar^2} U(\mathbf{R}, v, \boldsymbol{\rho}') \right] dv \right\}^* \times \\ &\exp \left\{ \frac{i}{2k} \int_0^z \left[ \Delta_{\rho} - \frac{2m\gamma}{\hbar^2} U(\mathbf{R}, u, \boldsymbol{\rho}) \right] du \right\} \varrho(0; \boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}') \end{aligned} \quad (4.37)$$

mit  $\varrho(0; \boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}') = A^*(\mathbf{R}; 0, \boldsymbol{\rho}') A(\mathbf{R}; 0, \boldsymbol{\rho})$ , wenn wir die Anfangsebene auf die Oberfläche des Objektes legen, sodaß die dortigen Amplituden durch die einfallende Welle bestimmt sind, d. h. nicht von den Objektkoordinaten  $\mathbf{R}$  abhängen.

Bei der Multislice-Approximation der Lösung dieser Operatorgleichung wird der 4-dimensionale FRESNEL-Propagator  $\hat{F}_{\rho'\rho}$  in zwei separate 2-dimensionale FRESNEL-Propagatoren  $\hat{F}_{\rho'}^*$  und  $\hat{F}_{\rho}$  zerfallen, da die Operatoren  $\Delta_{\rho}$  und  $\Delta_{\rho'}$  miteinander vertauschbar sind. Mit der Annahme (4.28) für die Wellenfunktion des Objektes ergibt sich wieder, daß wir den Mittelwert über die Objektkoordinaten  $\mathbf{R}$  für jedes Scheibchen separat berechnen können. Für das  $j$ -te Scheibchen ist so der Mittelwert

$$M_j(\boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}') = \int |\Psi_j(\mathbf{R})|^2 T_j^*(\mathbf{R}; \boldsymbol{\rho}') \cdot T_j(\mathbf{R}; \boldsymbol{\rho}) dV_R \quad (4.38)$$

zu berechnen, worin wie oben

$$\chi_j(\mathbf{R}; \boldsymbol{\rho}) = -\frac{m\gamma}{k\hbar^2} \int_{-\infty}^{+\infty} U_j(\mathbf{R}, \boldsymbol{\rho}, z) dz, \quad T_j(\mathbf{R}; \boldsymbol{\rho}) = \exp \{ i \chi_j(\mathbf{R}; \boldsymbol{\rho}) \}$$

und entsprechend für die Variable  $\boldsymbol{\rho}'$  ist. Mit Hilfe der Beziehung (4.31) und Beschränkung auf die Kumulante 2-ter Ordnung sowie den Abkürzungen

$$\begin{aligned} \chi_j &= \chi_j(\mathbf{R}; \boldsymbol{\rho}), \quad \chi'_j = \chi_j(\mathbf{R}; \boldsymbol{\rho}'), \\ \bar{\chi}_j \equiv \bar{\chi} &= \int |\Psi_j(\mathbf{R})|^2 \chi_j(\mathbf{R}; \boldsymbol{\rho}) dV_R, \quad \bar{\chi}'_j \equiv \bar{\chi}' = \int |\Psi_j(\mathbf{R})|^2 \chi_j(\mathbf{R}; \boldsymbol{\rho}') dV_R, \\ \mu_2 &= \overline{(\chi - \bar{\chi})^2}, \quad \mu'_2 = \overline{(\chi' - \bar{\chi}')^2}, \quad \mu_{11} = \overline{(\chi' - \bar{\chi}') \cdot (\chi - \bar{\chi})} \end{aligned}$$

erhalten wir für diesen Mittelwert

$$M_j(\boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}') = \exp \left\{ i (\bar{\chi} - \bar{\chi}') - \frac{1}{2} (\mu_2 + \mu'_2) + \mu_{11} \right\}. \quad (4.39)$$

In den Ausdrücken rechter Hand sind die Argumente und der Scheibchenindex  $j$  der eingehenden Größen unterdrückt. Nach der Mittelung über die Objektkoordinaten  $\mathbf{R}$  ist die Varianz  $\mu_2$  immer noch eine Funktion von  $\boldsymbol{\rho}$  und die Kovarianz  $\mu_{11}$  eine Funktion beider lateraler Koordinaten:

$$\mu_2 = \mu_2^j(\boldsymbol{\rho}), \quad \mu'_2 = \mu_2^j(\boldsymbol{\rho}'), \quad \mu_{11} = \mu_{11}^j(\boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}'). \quad (4.40)$$

Für  $\boldsymbol{\rho} \stackrel{!}{=} \boldsymbol{\rho}'$  wird die Kovarianz  $\mu_{11}$  gleich der Varianz  $\mu_2(\boldsymbol{\rho}) = \mu_{11}(\boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho})$ , sodaß sich für diesen Fall alle Terme gegenseitig aufheben werden:  $M_j(\boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}) = 1$ . Mit Rücksicht auf die

Definition (4.38) sehen wir, daß diese Eigenschaft immer erfüllt ist, wenn für die elastische Transmissionsfunktion  $T_j$  gilt:  $|T_j(\mathbf{R}; \boldsymbol{\rho})|^2 = 1$ , da die Objekteigenfunktionen normiert sind. Da man diese Mittelungen prinzipiell auch erst im Nachhinein durchführen kann, erhält dieses Verfahren die Wahrscheinlichkeit, wenn das für die elastische Transmissionsfunktion gilt.

Ohne den Term  $\mu_{11}$  würde  $M_j(\boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}')$  in (4.39), die sogenannte gemischt dynamische Objekttransparenz [107], in ein Produkt zweier Transmissionsfunktionen der Form (4.34) separieren, die je nur von einer lateralen Koordinate  $\boldsymbol{\rho}$  oder  $\boldsymbol{\rho}'$  abhängen. Da der 4-dimensionale FRESNEL-Propagator  $\hat{F}_{\boldsymbol{\rho}'\boldsymbol{\rho}}$  ebenfalls separiert, würde es für diesen Fall hinreichen, wenn man nur eine Komponente gemäß dem Multislice-Verfahren für elastische Streuung (4.15) mit der Transmissionsfunktion (4.34) durch das Objekt propagiert. Die durch die Kovarianz  $\mu_{11}(\boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}')$  beschriebene Kopplung zwischen  $\boldsymbol{\rho}$  und  $\boldsymbol{\rho}'$  ist Ausdruck des Umstandes, daß gemäß den Grundprinzipien der Quantenmechanik dem Elektron nach der Streuung keine eigene Wellenfunktion zukommt. Die Kovarianz zerfällt daher auch nicht in ein einfaches Produkt zweier Funktionen die je nur von einer Koordinate abhängen. Es ist dieser Term, der in der Folge den inkohärenten oder inelastischen Anteil an der Streustrahlung beschreibt.

Zusammengefaßt haben wir das folgende einfache Ergebnis gefunden: Bei der Multislice-Approximation für inelastische Streuung berechnet man die Dichtematrix in einer Ebene  $z_{j+1}$  gemäß der iterativen Vorschrift

$$\varrho(z_{j+1}, \boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}') = \hat{F}(d/2, \boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}') \left\{ M_j(\boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}') \left[ \hat{F}(d/2, \boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}') \varrho(z_j, \boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}') \right] \right\}. \quad (4.41)$$

Dabei ist aber darauf zu achten, daß man hier  $\boldsymbol{\rho} \stackrel{!}{=} \boldsymbol{\rho}'$  nur im nachhinein setzen darf. Andernfalls hätten wir ja oben die Amplitude  $A(\cdot, \cdot, \boldsymbol{\rho}')$  nicht an dem zweiten Exponentialoperator vorbeiziehen dürfen, sondern die Gleichung (4.36) weist uns an, den Mittelwert des Betragsquadrats des Produktes des Exponentialoperators und der Amplitude  $A(\cdot, \cdot, \boldsymbol{\rho})$  zu berechnen. Mit anderen Worten: Wir müssen die Bildintensität mit der Wahrscheinlichkeitsverteilung der Objektkoordinaten  $\mathbf{R}$  mitteln. Dies aber rechnet man für  $\boldsymbol{\rho} \neq \boldsymbol{\rho}'$  aus und setzt im Ergebnis die beiden Koordinaten gleich.<sup>10</sup>

## 4.5 Eine praktische Realisierung

Bei der praktischen Realisierung des Multislice-Verfahrens für inelastische Streuung wird man wie beim elastischen Verfahren die Phasenschiebung  $\bar{\chi}$  als Summe von Beiträgen unabhängiger Atome darstellen. Das bedeutet, daß in dem zu berechnenden Mittelwert

$$\bar{\chi}_j(\boldsymbol{\rho}) = \int |\Psi_j(\mathbf{R})|^2 \chi_j(\mathbf{R}; \boldsymbol{\rho}) dV_R \quad (4.42)$$

die Objektwellenfunktion  $\Psi_j(\mathbf{R})$  in ein Produkt aus Atomwellenfunktionen zerfällt. Gleichzeitig kann man sich die in die statischen Phasenschiebungen  $\chi_j$  eingehende Coulomb-Wechselwirkungsenergie als nach Atomen sortiert vorstellen. Damit zerfällt das obige Integral in eine Summe aus Beiträgen unabhängiger Atome

$$\bar{\chi}_j(\boldsymbol{\rho}) = \frac{m\gamma}{k\hbar^2} \sum_{l=1}^{A_j} \int |\Psi_j^l(X_l, x_l)|^2 \left\{ \frac{Z_l \alpha}{|\mathbf{r} - X_l|} - \sum_{k=1}^{Z_l} \frac{\alpha}{|\mathbf{r} - (X_l + x_{lk})|} \right\} dz dV_{x_l} dV_{X_l}. \quad (4.43)$$

<sup>10</sup>Man vergleiche dazu auch die diesbezügliche Diskussion im Kapitel 1.

Darin bezeichnet  $X_l$  die Position des  $l$ -ten Atomkerns. Mit  $x_l$  wird hier die Gesamtheit der Koordinaten der  $Z_l$  Elektronen des  $l$ -ten Atoms bezeichnet. Die  $X_l, x_{lk}$  und  $\mathbf{r} = (\boldsymbol{\rho}, z)$  sind jeweils 3-dimensionale Vektoren<sup>11</sup>, und  $\alpha = e^2/4\pi\epsilon_0$  bezeichnet die Coulomb-Wechselwirkungskonstante. Die Atomwellenfunktionen schreiben sich in adiabatischer Näherung gemäß dem 3. Kapitel als ein Produkt der Form

$$\Psi_j^l(X_l, x_l) = \phi_j(X_l) \Phi_j(X_l; x_l), \quad (4.44)$$

wobei sich hier die Indizes an den Zustandsfunktionen auf das  $l$ -te Atom im  $j$ -ten Scheibchen des Objektes beziehen.

Für die für das Multislice-Verfahren benötigten Größen bekommt man gemäß der im Anhang B auf Seite 109ff ausgeführten Rechnung, die folgenden Ergebnisse für unabhängige Atome: Der die thermisch bedingte diffuse Streuung (TDS) beschreibende elastische Anteil der Kovarianz  $\mu_{11}^{\text{TDS}}$  und der die inelastische Streuung beschreibende Anteil  $\mu_{11}^{\text{in}}$  des Objekt-potentials für ein Atom im Ursprung des Koordinatensystems lautet:

$$\bar{\chi}(\mathbf{s}) = \frac{2\pi}{k} f^{\text{B}}(\mathbf{s}) e^{-u^2 \mathbf{s}^2}, \quad (4.45)$$

$$\mu_{11}^{\text{TDS}}(\mathbf{s}, \mathbf{s}') = \left( \frac{2\pi}{k} \right)^2 f^{\text{B}}(\mathbf{s}) f^{\text{B}}(\mathbf{s}') \left[ e^{-u^2(\mathbf{s}-\mathbf{s}')^2} - e^{-u^2(\mathbf{s}^2+\mathbf{s}'^2)} \right], \quad (4.46)$$

$$\mu_{11}^{\text{in}}(\mathbf{s}, \mathbf{s}') = \left( \frac{4\pi\alpha_S}{\beta} \right)^2 \frac{F(\mathbf{s}-\mathbf{s}') - \frac{1}{Z} F(\mathbf{s}') F(\mathbf{s})}{q^2 q'^2} e^{-u^2(\mathbf{s}-\mathbf{s}')^2}. \quad (4.47)$$

Darin ist  $f^{\text{B}}$  die gemäß (4.18) definierte Kinematik korrigierte  $\{\gamma\}$  Bornsche Elektronen-Streuamplitude<sup>12</sup> und  $F$  der Formfaktor bzw. die Röntgenstreuamplitude des Atoms, und es gilt  $\mu_{11}(\mathbf{s}, \mathbf{s}') = \mu_{11}^{\text{TDS}}(\mathbf{s}, \mathbf{s}') + \mu_{11}^{\text{in}}(\mathbf{s}, \mathbf{s}')$ , sowie im Nenner der dritten Zeile  $q^2 = (-k\Theta_E \mathbf{e}_z)^2 + \mathbf{s}^2$ . Diese Ausdrücke gelten für den Grundzustand des Atoms bzw. Objektes und sind mit den Objektzustandsfunktionen (4.44) in der harmonischen Näherung<sup>13</sup> berechnet. Aus den Ausführungen im Anhang B ist zu entnehmen, daß sich die Berechnung des thermischen Mittelwertes nicht so einfach gestalten wird.

Es fehlt in der obigen Liste noch ein Ausdruck für das Absorptionspotential  $\mu_2(\boldsymbol{\rho})$ . Wegen der Identität  $\mu_2(\boldsymbol{\rho}) = \mu_{11}(\boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}' = \boldsymbol{\rho})$  kann man dieses aus den obigen Ausdrücken durch eine Faltung oder Korrelation gewinnen:

$$\begin{aligned} \mu_2(\mathbf{s}) &= \int e^{i\mathbf{s}\boldsymbol{\rho}} \mu_{11}(\boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}' = \boldsymbol{\rho}) d\mathbf{f}_{\boldsymbol{\rho}} \\ &= \int e^{i\mathbf{s}\boldsymbol{\rho}} \left\{ \iint e^{-i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\boldsymbol{\rho}} \mu_{11}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \frac{d\mathbf{f}_{\mathbf{k}}}{(2\pi)^2} \frac{d\mathbf{f}_{\mathbf{k}'}}{(2\pi)^2} \right\} d\mathbf{f}_{\boldsymbol{\rho}} \\ &= \iint (2\pi)^2 \delta(\mathbf{s} - \mathbf{k} + \mathbf{k}') \mu_{11}(\mathbf{k}, \mathbf{k}') \frac{d\mathbf{f}_{\mathbf{k}}}{(2\pi)^2} \frac{d\mathbf{f}_{\mathbf{k}'}}{(2\pi)^2} \\ &= \int \mu_{11}(\mathbf{x}, \mathbf{s} - \mathbf{x}) \frac{d\mathbf{f}_{\mathbf{x}}}{(2\pi)^2} = \int \mu_{11}(\mathbf{s} + \mathbf{y}, \mathbf{y}) \frac{d\mathbf{f}_{\mathbf{y}}}{(2\pi)^2}, \end{aligned} \quad (4.48)$$

oder man berechnet  $\mu_2(\boldsymbol{\rho})$  durch FOURIER-Transformation aus den obigen Ausdrücken, setzt die Koordinaten einander gleich und transformiert dann zurück, je nachdem was leichter durchführbar ist.

<sup>11</sup>Dazu würden in  $\Psi_j^l$  eigentlich noch weitere Variable für den Spinzustand kommen.

<sup>12</sup>Die „Kopplungskonstante“  $2\pi/k \cdot \gamma = \lambda \cdot \gamma$  geht daher mit steigender kinetischer Energie gegen den konstanten Grenzwert der Compton-Wellenlänge des Elektrons  $\lambda_C = 2.426$  pm und nicht wie die d’Broglie Wellenlänge  $\lambda$  gegen 0.

<sup>13</sup>Vgl. Formel 3.19 auf Seite 27.

Für  $\mu_2^{\text{TDS}}(\mathbf{s})$  bekommt man so

$$\mu_2^{\text{TDS}}(\mathbf{s}) = \frac{1}{k^2} \int f^{\text{B}}(\mathbf{x}) f^{\text{B}}(\mathbf{s} - \mathbf{x}) \left[ e^{-u^2 s^2} - e^{-u^2(x^2 + (\mathbf{s} - \mathbf{x})^2)} \right] d\mathbf{x}. \quad (4.49)$$

Für  $\mu_2^{\text{in}}(\mathbf{s})$  findet sich:

$$\mu_2^{\text{in}}(\mathbf{s}) = \left( \frac{4\pi\alpha_S}{\beta} \right)^2 \left\{ \frac{\pi}{c^2} \frac{\text{arsinh} x}{x\sqrt{1+x^2}} F(\mathbf{s}) - \frac{1}{Z} \int \frac{F(\mathbf{y}) F(\mathbf{s} - \mathbf{y})}{(\mathbf{c} + \mathbf{y})^2 (\mathbf{c} + \mathbf{s} - \mathbf{y})^2} \frac{d\mathbf{y}}{(2\pi)^2} \right\} e^{-u^2 s^2}. \quad (4.50)$$

Darin bedeutet  $\mathbf{c} = -k\Theta_E \mathbf{e}_z$  und  $x = s/2c$ . Der Ausdruck für  $\mu_2^{\text{TDS}}(\mathbf{s})$  wird explizit im Kapitel 6.7 auf den Seiten 86ff berechnet.

Für die Röntgenstreuamplitude  $F(\mathbf{s})$  würde man wie oben beim Multislice-Verfahren für die elastische Streuung für die Elektronenstreuamplitude einen analytischen Fit verwenden. Mindestens wegen des multiplikativen Temperaturfaktors in der Formel für  $\mu_{11}^{\text{in}}$  in (4.45) ist der Gauss-Fit von Doyle-Turner [30]

$$F_{\text{DT}}^{\text{B}}(\mathbf{s}) = \sum_{j=1}^5 a_j e^{-b_j s^2}, \quad b_5 = 0, \quad s = 4\pi \frac{\sin(\vartheta/2)}{\lambda} \leq 2 \cdot 4\pi \text{ \AA}^{-1} \quad (4.51)$$

hier von den möglichen Ansätzen für Fit-Funktionen der einzig praktikable analytische Fit, der eine Zerlegung dieses Ausdrucks in eine Summe aus 2-dimensionalen symmetrischen Faktoren ermöglicht. Den Grund für eine solche Zerlegung werden wir unten sogleich besprechen. Aber auch ohne diesen Temperaturfaktor scheint hier nur ein Fit mit Gauss-Funktionen praktikabel zu sein.

Damit haben wir prinzipiell alle Einzelteile für eine numerische Berechnung von elektronenmikroskopischen Bildern für Durchstrahlungsmikroskope unter Berücksichtigung inelastischer Streuprozesse beisammen. Eine direkte numerische Auswertung des 4-dimensionalen Multislice-Verfahrens (4.41) ist mit heutigen Computern allerdings nicht möglich, da allein schon die Anforderungen an den erforderlichen Hauptspeicher nicht erfüllbar sind.<sup>14</sup> Um zu einem praktisch anwendbaren Verfahren zu gelangen, könnten wir versuchen, die gemischte Dichte der Verteilung der Koordinaten des Elektrons  $\varrho(z_j + d/2, \boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}')$  in der Mittelebene  $z_j + d/2$  nach der Streuung in eine Reihe nach 2-dimensionalen, symmetrischen Faktoren

$$M_j(\boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}') \varrho(z_j + d/2, \boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}') = \sum_{k=0}^{\infty} \varphi_k^*(z_j; \boldsymbol{\rho}') \cdot \varphi_k(z_j; \boldsymbol{\rho}) \quad (4.52)$$

zu zerlegen, denn dann erhält man für die gemischte Dichte der Verteilung der Koordinaten des Elektrons  $\varrho(z_j, \boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}')$  in der Ebene  $z_{j+1}$  den Ausdruck

$$\varrho(z_{j+1}, \boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}') = \sum_{k=0}^{\infty} \left[ \hat{F}(d/2, \boldsymbol{\rho}') \varphi_k(z_j; \boldsymbol{\rho}') \right]^* \cdot \left[ \hat{F}(d/2, \boldsymbol{\rho}) \varphi_k(z_j; \boldsymbol{\rho}) \right]. \quad (4.53)$$

<sup>14</sup>Für nur eine komplexe 512<sup>4</sup>-Matrix benötigt man einen Hauptspeicher von 512 GByte, wenn man mit einfachen genauen Floatingpoint-Zahlen (2 × 4 = 8 Byte) rechnet, und bei 1024-er Matrizen 8 TByte. Matrizen dieser Größe sind für das inelastische Multislice-Verfahren notwendig, um Artefakte durch periodische Fortsetzung - das ist unerwünschte kohärente Streuung - durch Bilden von großen Superzellen zu vermeiden bzw. zu minimieren. Die periodische Fortsetzung kommt durch Verwendung einer diskreten FOURIER-Transformation (FFT) bei der numerischen Umsetzung der FRESNEL-Propagation zustande. Vgl. dazu den Anhang F auf Seite 141ff. Beim elastischen Multislice-Verfahren könnte man sich bei Kristallen auf eine Einheitszelle und damit auf kleinere Matrizen beschränken - sofern man nur das Bild und nicht auch das Diffraktionsbild berechnen will.

Jeder der Faktoren in den eckigen Klammern kann nun ohne Schwierigkeiten berechnet werden. Im Falle rein elastischer Streuung gilt für jedes Scheibchen  $\varphi_k(z_j; \boldsymbol{\rho}) = \varphi(z_j; \boldsymbol{\rho}) \cdot \delta_{0,k}$ , sodaß sich die obige Darstellung auf das konventionelle 2-dimensionale Multislice-Verfahren (4.15) reduziert, da man es hier für alle Scheibchen mit nur einem zu berechnenden Term zu tun hat. Bei Berücksichtigung der inelastischen Streuung wächst die Zahl der zu berücksichtigenden Terme aber rapide an. Man muß sie daher noch nach der Größe ihres Beitrags zur Bildintensität sortieren, d. h. nach der „Ordnung“ der inelastischen Streubeiträge. Ein einfach inelastischer Streubeitrag im Sinne dieser Ordnungsrelation ist dabei ein solcher, bei dem in irgendeinem der  $n$  Scheibchen des Objektes eine inelastische (und gleichzeitige elastische) Streuung stattfindet und in den restlichen  $n - 1$  Scheibchen nur elastische Streuung. Dies ist eine direkte Folge der Zerlegung in Faktoren, denn könnten wir gemäß dem 4-dimensionalen Multislice-Verfahren (4.41) vorgehen, könnten wir in jedem Scheibchen die elastischen und inelastischen Streubeiträge mitnehmen.

Die Frage, ob eine derartige Zerlegung existiert, können wir mit Rückblick auf die Definition (4.38) allgemein bejahen. Man kann sich immer vorstellen, daß man die erforderlichen inkohärenten Mittelwerte a posteriori in der Bild- und/oder Beugungsbildebene durchführt. Damit haben wir nebenher bewiesen, daß die von Wang in [126] bezweifelte korrekte Berücksichtigung der „mehrfach“ thermisch diffusen Streuung beim sogenannten „frozen lattice modell“ oder auch „frozen phonon modell“ auf einer in diesem Zusammenhang falschen Vorstellung des Begriffs „mehrfach“ beruht und gegenstandslos ist. Die oben eingeführte Ordnung nach Mehrfachstreuungsprozessen ist nämlich rein willkürlich und hängt von der hier analog dem Multislice-Verfahren für die elastische Streuung gewählten Zerlegung des Objektes in unabhängige Scheibchen ab. Um zum „frozen lattice modell“ zu gelangen, berechnen wir in der Formel (4.38) nur den elektronischen Mittelwert. Wenn wir dann den inelastischen Anteil weglassen, dann verschwindet der gesamte Ausdruck (B.19) auf Seite 112 identisch. Die zweite Zeile deswegen, weil wir inelastische Streuprozesse nicht berücksichtigen wollten und die erste Zeile, weil in der harmonischen Mittelung alle Atome in ihrer Ruhelage verharrend zu denken sind.<sup>15,16</sup> Somit verbleiben in dem Ausdruck für die gemischt dynamische Objekttransparenz (4.38) nur die Phasenschiebungen  $\chi$  und  $\chi'$ , die proportional zu der FOURIER-Transformierten des Matricelementes  $f_{00}^l(X_0^l; \mathbf{s})$  sind. Die in der Formel (B.15) analytisch ausgedrückte Mittelung über die Kernbewegungen führt man beim „frozen lattice modell“ nun a posteriori in der Bild- und/oder Beugungsbildebene durch. Wenn man für die Verteilungsfunktion für die Kernbewegungen eine Gauss-Verteilung annimmt, dann fallen in (4.31) alle Kumulanten von höherer Ordnung als 2 fort. Da sich ja außerdem das 4-dimensionale Multislice-Verfahren in dem vorliegenden Fall auf das 2-dimensionale Multislice-Verfahren (4.15) reduziert, weil es in jedem Scheibchen nur eine elastische Transmissionsfunktion gibt, ist damit erwiesen, daß die Vorgehensweise beim „frozen lattice modell“ in allen Ordnungen der thermisch diffusen Mehrfachstreuungen durchaus korrekt ist.

Bei der praktischen Realisierung einer Zerlegung der Form (4.52) werden wir annehmen, daß die gemischte Dichte der Verteilung der Koordinaten des Elektrons in der Eintrittsebene  $z_0$  des Objektes ein einfaches Produkt ist:

$$\varrho(z_0, \boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}') = \varphi^*(z_0; \boldsymbol{\rho}') \cdot \varphi(z_0; \boldsymbol{\rho}). \quad (4.54)$$

Das ist z. B. der Fall, wenn das Objekt mit einer ebenen Welle beleuchtet wird, wie wir

<sup>15</sup>Formal: Setze im Debye-Faktor  $D(\cdot)$  die halbe Varianz  $u^2 = 0$ .

<sup>16</sup>Eine andere Möglichkeit zu diesem Ergebnis zu kommen, ergibt sich, wenn wir von der Gleichung (3.40) des vorherigen Kapitels ausgehen. In der harmonischen Näherung wertet man sie nur für die Ruhelage  $X_0$  der Kerne aus.

das oben O.w.B.d.A. angenommen hatten.<sup>17</sup> Dann bedeutet eine Zerlegung der Form (4.52) eine ebensolche Zerlegung der gemischt dynamischen Objekttransparenz  $M(\rho, \rho')$ . Zu dem Ende entwickelt man nun darin gemäß

$$M(\rho, \rho') = \exp \left\{ i(\bar{\chi} - \bar{\chi}') - \frac{1}{2}(\mu_2 + \mu'_2) \right\} \cdot \{1 + \mu_{11} + \&c\} , \quad (4.55)$$

und hat in der Folge dann für den die inkohärente Streustrahlung beschreibenden Kopp-  
lungsterm  $\mu_{11}$  eine Reihenentwicklung in Produkte der Form

$$\mu_{11}(\rho, \rho') = \sum_k T_k^*(\rho') \cdot T_k(\rho) \quad (4.56)$$

aufzufinden. Dann hätte man damit eine Zerlegung der geforderten Form (4.52).<sup>18</sup>

Wir wissen zwar, daß es prinzipiell eine Zerlegung der Form (4.52) oder (4.56) im Ortsraum gibt, und im Kapitel 6.6 werde ich auch die lange vergeblich gesuchten exakten Zerlegungen im Ortsraum für die Ausdrücke (4.45) angeben, aber wenn man sich diese Ausdrücke in (4.45) im Hinblick auf das Verfahren (4.22) anschaut, mit denen die einzelnen Atome an ihre korrekte Lage in der Transmissionsfunktion bzw. der gemischt dynamischen Objekttransparenz  $M(\rho, \rho')$  gesetzt bzw. verschoben werden, dann erscheint es einem als viel praktischer diese Ausdrücke gleich dort zu zerlegen, wo man sie braucht: Im Fourierraum! Der Vorteil einer Zerlegung in Produkte im Fourierraum ist insbesondere bei dem Term  $\mu_{11}^{\text{TDS}}$  in (4.45) evident, braucht man doch bei diesem Term nur die erste Exponentialfunktion in der Klammer zu zerlegen, um dies ein für alle Mal für beliebige Elektronenstreuamplituden  $f^B$  zu erledigen. Wir entwickeln daher zweckmäßigerweise die Fourierraum-Darstellung der gemischt dynamischen Objekttransparenz  $M(s, s')$  bzw. des Kopplungsterms  $\mu_{11}(s, s')$  darin gemäß

$$\mu_{11}(s, s') = \sum_k T_k^*(s') \cdot T_k(s) . \quad (4.57)$$

Da wir uns die Röntgenstreuamplitude als durch einen Gauss-Fit (4.51) dargestellt denken, läuft diese Zerlegung effektiv nur darauf hinaus, die in beiden Variablen gekoppelte Funktion

$$e^{-u^2(s-s')^2} \quad (4.58)$$

in eine Summe von Produkten zu zerlegen, die je nur von einer der beiden lateralen Impulskoordinaten  $s$  oder  $s'$  abhängen. Dies ist nun mit Hilfe der Reihenentwicklung nach modifizierten Besselfunktionen [[3]-9.6.34]

$$e^{2u^2 ss'} = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} I_n(2u^2 ss') e^{in(\varphi-\varphi')} \quad (4.59)$$

<sup>17</sup>Andernfalls müßten wir schon die gemischte Dichte in der Eintrittsebene  $z_0$  in eine Summe solcher in  $\rho$  und  $\rho'$  symmetrischen Produkte zerlegen. Das wäre der Fall bei (partiell) inkohärenter Beleuchtung des Objektes.

<sup>18</sup>Ferner könnte man den Term 2.-ter Ordnung in der Kovarianz  $\mu_{11}$  in Formel (4.55) mittels der Terme der symmetrischen Reihenentwicklung (4.56) und der Lagrange'schen Identität wie folgt berechnen:

$$\mu_{11}^2 \equiv \left( \sum_{i=1}^n \beta_i^* \alpha_i \right)^2 = \left( \sum_{i=1}^n \beta_i^* \right)^* \left( \sum_{i=1}^n \alpha_i^2 \right) - \sum_{i < j} (\beta_i^* \alpha_j - \beta_j^* \alpha_i)^2 .$$

Allerdings wäre es bei einer solchen unsymmetrischen Zerlegung erforderlich jeweils alle  $n$  Entwicklungsterme  $\alpha_i$  zwecks späterer Verwendung zwischen zu speichern, ein Umstand der bei einer symmetrischen Zerlegung nicht auftritt.

worin  $\varphi, \varphi'$  die Phasenwinkel von  $\mathbf{s}, \mathbf{s}'$  bedeuten, leicht möglich. Denn die modifiziert Besselfunktion  $I_n$  hat die Potenzreihenentwicklung [[3]-9.6.10, 9.6.6]

$$I_n(2u^2ss') = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(u^2ss')^{|n|+2m}}{m!(m+|n|)!}. \quad (4.60)$$

Zusammen ergibt das eine Zerlegung von der gewünschten Form

$$e^{2u^2ss'} = \sum_{|n|, m=0}^{\infty} \left\{ \frac{(us')^{|n|+2m}}{\sqrt{m!(m+|n|)!}} e^{in\varphi'} \right\}^* \left\{ \frac{(us)^{|n|+2m}}{\sqrt{m!(m+|n|)!}} e^{in\varphi} \right\}. \quad (4.61)$$

Der obige Ausdruck für die Fourierraum-Zerlegung von  $\mu_{11}(\mathbf{s}, \mathbf{s}')$  galt für ein Atom im Zentrum des (Orts-)Koordinatensystems  $\boldsymbol{\rho}$ . Für ein Atom an der Stelle  $\boldsymbol{\rho}_l$  weist uns die Formel (4.22) an, diesen Ausdruck mit  $e^{i(\mathbf{s}-\mathbf{s}')\boldsymbol{\rho}_l}$  zu multiplizieren. Das ist auch aus der Formel (B.28) im Anhang B auf Seite 114 ersichtlich. Damit bekommen wir für die Summe über alle Atome  $l$  des  $j$ -ten Scheibchens einen Ausdruck der Form

$$\begin{aligned} \sum_l \mu_{11}^l(z_j; \mathbf{s}, \mathbf{s}') &= \sum_l e^{i(\mathbf{s}-\mathbf{s}')\boldsymbol{\rho}_l} \sum_k \{T_k^l(z_j; \mathbf{s}')\}^* \cdot T_k^l(z_j; \mathbf{s}) \\ &= \sum_{kl} \{T_k^l(z_j; \mathbf{s}') e^{i\boldsymbol{\rho}_l \mathbf{s}'}\}^* \cdot \{T_k^l(z_j; \mathbf{s}) e^{i\boldsymbol{\rho}_l \mathbf{s}}\}. \end{aligned} \quad (4.62)$$

Darin wird aus der Summe über die Entwicklungsterme  $k$  jene Doppelsumme über  $|n|, m$  in Formel (4.61).

Die inverse FOURIER-Transformierte dieses Ausdrucks ist nun in die Formel (4.55) einzusetzen. Schreiben wir darin die Exponentialfunktion als Produkt zweier Exponentialfunktionen der Form

$$\exp \left\{ i\bar{\chi}(z_j; \boldsymbol{\rho}) - \frac{1}{2} \mu_2(z_j; \boldsymbol{\rho}) \right\} = T^{\text{abs}}(z_j; \boldsymbol{\rho}), \quad (4.63)$$

worin die Bezeichnung  $T^{\text{abs}}$  auf den Umstand anspielt, daß dies eine elastische Transmissionsfunktion mit Berücksichtigung der *Absorption* im  $j$ -ten Scheibchen ist, dann bekommen wir für die gemischt dynamische Objekttransparenz des  $j$ -ten Scheibchens den Ausdruck

$$\begin{aligned} M(z_j; \boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}') &= T^{\text{abs}*}(z_j; \boldsymbol{\rho}') \cdot T^{\text{abs}}(z_j; \boldsymbol{\rho}) + \\ &\sum_{kl} \{T^{\text{abs}}(z_j; \boldsymbol{\rho}') \cdot T_k^l(z_j; \boldsymbol{\rho}')\}^* \cdot \{T^{\text{abs}}(z_j; \boldsymbol{\rho}) \cdot T_k^l(z_j; \boldsymbol{\rho})\} + \&c, \end{aligned} \quad (4.64)$$

worin

$$T_k^l(z_j; \boldsymbol{\rho}) = \hat{\mathcal{F}}^- \{T_k^l(z_j; \mathbf{s}) e^{i\boldsymbol{\rho}_l \mathbf{s}}\} \quad (4.65)$$

bedeutet. Auch aus dieser Formel ist der im Kapitel 2.2 besprochene Punkt ersichtlich, daß es zwar vorkommen kann, daß elastische Streuung ohne inelastische Streuung auftritt, daß aber der umgekehrte Fall unmöglich ist: „*Inelastische Streuung bringt unbedingt auch gleichzeitig elastische Streuung mit sich*“ [70].

Vernachlässigen wir dabei in den Ausdrücken (4.45) den durch inelastische Streuung an der Elektronenhülle entstehenden Ausdruck  $\mu_{11}^{\text{in}}$ , geschieht dies bei der thermisch diffusen Streuung in der Weise, daß wird:

$$|\bar{\chi}(\mathbf{s})|^2 + \mu_{11}^{\text{TDS}}(\mathbf{s}, \mathbf{s}' = \mathbf{s}) = |\lambda f^{\text{B}}(\mathbf{s})|^2. \quad (4.66)$$



In der Bornschen Näherung für die Streuamplitude eines Atoms bzw. des Objektes ist die Gesamtintensität der elastischen und der thermisch diffusen Streustrahlung gleich der Intensität der Streustrahlung für den Fall, daß die Atome an ihren Plätzen ruhen. Das gilt dann auch für die zugehörigen Wirkungsquerschnitte in Bornscher Näherung, denn für diese hat man den Zusammenhang

$$\sigma_t^B = \mu_2(s = 0). \quad (4.67)$$

Die Formel (4.66), beziehungsweise für den Fall mehrerer Atome  $A$  der Ausdruck<sup>19</sup>

$$|\bar{\chi}(s) \cdot P(s)|^2 + A \cdot \mu_{11}(s, s' = s) \quad (4.68)$$

mit der Phasenschiebungsmatrix  $P(s)$ , ist bis auf einen Faktor nichts anderes als die Intensität des Beugungsbildes berechnet in Bornscher Näherung. Wegen des Umstandes, daß die Bornsche Näherung die Gesamtintensität nicht erhält, fehlt hierbei charakteristischerweise der Term mit dem Absorptionspotential  $\mu_2$ . Man sieht, daß hier die Orte der durch den ersten Term beschriebenen Beugungsmaxima („Bragg-Reflexe“) trotz inkohärenter – thermisch diffuser und inelastischer – Streuung fest bleiben. Es ändert sich nur deren Intensität. Die Bragg-Reflexe sitzen dabei auf einem strukturlosen, zu höheren Raumfrequenzen hin abfallenden Untergrund. Im Kapitel 6, Abschnitt 6.4 und im Kapitel 7 werden wir sehen, daß sich dieses Bild qualitativ ändern wird, sobald wir die elastische Mehrfachstreuung der inelastischen Streuwellen gemäß dem obigen Multislice-Verfahren berücksichtigen. Die sich dann einstellenden Strukturen im Untergrund zwischen den Bragg-Reflexen beruhen daher allesamt auf dieser Mehrfachstreuung. Daher enthält dieser inkohärente Anteil der Streustrahlung in der Folge auch einen großen räumlichen Informationsanteil. Dieser kann prinzipiell genauso groß sein wie der der elastischen Streuwelle.

Im Gegensatz zur kohärenten Summation über alle Atome in der Formel (4.22) für die elastische Phasenschiebung  $\chi_j$  weist uns die Formel (4.64) an, die Streubeiträge aller Atome  $l$  und aller Entwicklungsterme  $k$  bzw.  $|n|, m$  inkohärent aufzusummieren. Wir können aber dabei jeden einzelnen Reihenterm – jede „Partialwelle“ – mit dem 2-dimensionalen Multislice-Verfahren für die elastische Streuung durch das Objekt und das nachfolgende Abbildungssystem propagieren.

Im nächsten Kapitel behandeln wir daher die Propagation einer solchen 2-dimensionalen „Partialwelle“ durch das Abbildungssystem. Dadurch werden die Formeln, mit denen diese Propagation beschrieben wird, nur „halb“ so lang, wie wenn wir den vollen 4-dimensionalen Formalismus darauf anwenden würden. Das trägt zur Übersichtlichkeit bei und ist cum grano salis ohne wesentliche Beschränkung der Allgemeinheit.

Im darauffolgenden Kapitel gehe ich dann auf einige Details zur konkreten numerischen Berechnung bzw. Implementation des Ausdrucks (4.64) im Simulationsprogramm **YaMS** (**Y**et **a**nother **M**ulti**S**lice) näher ein.

*Nun darf ich mit gutem Recht den III. Teil wie eine Vormittagsaufgabe durch ein eingeschobenes Mahl beschließen, da mir der Meister der Herzensstärkungen zusingt:*

*Noch ist die Hälfte zu tun, die Hälfte des Werks ist vollendet. Werft den Anker hinaus! Hier verweile mein Schiff.*

*(Kepler, Astronomia nova)*

<sup>19</sup>Dabei nehme ich  $A$  gleiche Atome an, andernfalls hat man darin die eingehenden Größen als Vektoren mit Komponenten für alle Atomsorten –  $\bar{\chi}$ ,  $P$  – bzw. Atome –  $A$ ,  $\mu_{11}$  – aufzufassen.

# Kapitel 5

## Propagation durch das Elektronenmikroskop

Eine ausführliche Beschreibung der Propagation einer Elektronenwelle durch ein Elektronenmikroskop kann man in [107] oder [108] finden. Hier werde ich nur auf das für das Multislice-Verfahren Notwendigste eingehen.

### 5.1 Fresnelpropagation

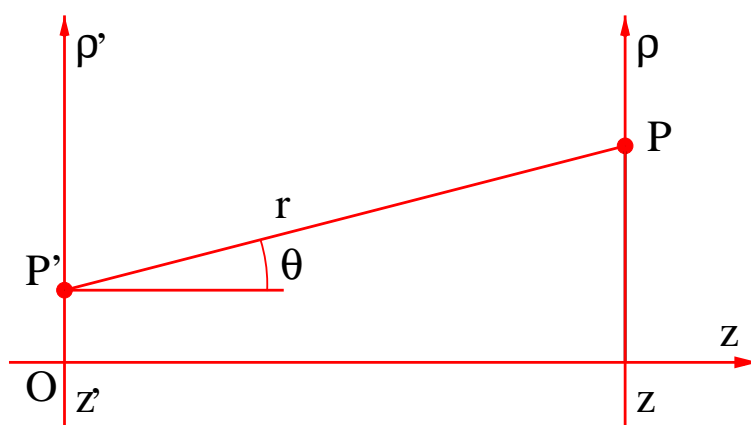


Abbildung 5.1: Zum Huygensschen Prinzip

Gemäß dem Huygensschen Prinzip [59] berechnet sich die Amplitude einer Elektronenwelle am Punkt P in einer Ebene  $z$  von Ursprung O entfernt [117]:

$$\psi_P = \psi(z; \boldsymbol{\rho}) = \int \overbrace{\psi(z'; \boldsymbol{\rho}')}^{\text{Amplitude auf } z'} \cdot \underbrace{\frac{e^{ikr}}{i\lambda r}}_{\text{Elementarwelle}} \cdot \underbrace{\left\{ 1 + \frac{i\lambda}{2\pi r} \right\}}_{\text{Sommerfeldfaktor}} \cdot \overbrace{\cos \theta df_{\rho'}}^{\text{Flächenelementes gesehen von P aus}} \quad (5.1)$$

Der in dieser Gleichung hinzutretende „Sommerfeldfaktor“  $1 + i\lambda/2\pi r$  für einen ebenen Schirm ist eine mathematische Korrektur des Huygensschen Prinzips nach Sommerfeld [117]. Weiterhin sei in  $r^2 = (\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}')^2 + (z - z')^2$  der Abstand der beiden Ebenen  $z - z' = a$  sehr viel größer als die lateralen Abmessungen  $\rho$  des beleuchteten Bereichs des Objektes. Der Abstand  $a$ , also etwa die Fokusslänge  $f$  einer Elektronenlinse (vgl. Abbildung 5.2 auf Seite 58), beträgt einige mm, während der beleuchtete Bereich einen Durchmesser von etwa  $1 \mu\text{m}$  hat. Der elektronenmikroskopische Strahlengang kann daher in guter

Näherung als paraxial beschrieben werden. Man kann deshalb im Exponenten der Elementarwelle schreiben

$$kr = \frac{2\pi}{\lambda} r = ka + \frac{k}{2a} (\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}')^2 + \&c.$$

Dabei muß man wegen der Kleinheit der d'Broglie Wellenlänge des Elektrons einer kinetischen Energie der Größenordnung 100 keV von ca. 3 pm im Zähler bis zur 2. Ordnung entwickeln, während man im Nenner der Elementarwelle den Abstand  $r$  durch  $a$  ersetzen darf. Wegen der kleinen Winkel des paraxialen Strahlengangs kann man schließlich noch den Kosinus durch 1 ersetzen. Das Resultat dieser Näherungen

$$\psi(a; \boldsymbol{\rho}) \simeq \frac{e^{ika}}{i\lambda a} \int \psi(z'; \boldsymbol{\rho}') \exp \left\{ i \frac{k}{2a} (\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}')^2 \right\} d\mathbf{f}_{\boldsymbol{\rho}'} \quad (5.2)$$

ist eine Faltung der Amplitude  $\psi$  auf  $z'$  mit einer FRESNEL-Funktion. Man rechnet ein solches Integral daher am bequemsten mit Hilfe des Faltungstheorems für die Fourier-Transformation aus. Das ergibt:

$$\psi(a; \mathbf{s}) = \frac{e^{ika}}{i\lambda a} \psi(z'; \mathbf{s}) \cdot \left[ ia\lambda \exp \left\{ -i \frac{a}{2k} \mathbf{s}^2 \right\} \right] = e^{ika} \psi(z'; \mathbf{s}) \exp \left\{ -i \frac{a}{2k} \mathbf{s}^2 \right\}. \quad (5.3)$$

Hierbei haben wir die Formel (G.18) auf Seite 157 und die Vorzeichenkonvention  $+i\mathbf{s}\boldsymbol{\rho}$  für die Fourier-Transformation verwendet. Mit  $\mathbf{s}$  wird die zu  $\boldsymbol{\rho}$  konjugierte Variable bezeichnet. Da wir im folgenden auch im Falle der inelastischen Streuung immer an Ausdrücken interessiert sind, die sich jeweils immer auf eine Ebene  $z = a$  beziehen, können wir fernerhin den Phasenfaktor  $e^{ika}$  in den Gleichungen fortlassen.

Die durch das Faltungsintegral (5.2) beschriebene Propagation der Elektronenwelle von einer Ebene  $z'$  zu einer Ebene  $z$  im Abstand  $a$  heißt *FRESNEL-Propagation*. Es handelt sich konkret um eine Vorwärtstransformation, wenn  $a$  positiv ist, d. h. wenn die Zielebene sich rechts von der Integrationsebene in Richtung der positiven  $z$ -Achse befindet. Wir bezeichnen den Kern der *FRESNEL-Propagation* folgendermaßen

$$F(a; \boldsymbol{\rho}) = \frac{1}{i\lambda a} \exp \left\{ +i \frac{k}{2a} \boldsymbol{\rho}^2 \right\}, \quad F(a; \mathbf{s}) = \exp \left\{ -i \frac{a}{2k} \mathbf{s}^2 \right\}. \quad (5.4)$$

Darin ist das Vorzeichen  $+i$  in  $F(a; \boldsymbol{\rho})$  unabhängig von der Vorzeichenkonvention der FOURIER-Transformation, während das Vorzeichen des Integralkerns  $F(a; \mathbf{s})$  von dieser abhängt. Es ist in der Elektronenmikroskopie leider Usus, diese Integralkerne selbst Propagatoren zu nennen.

Die *FRESNEL-Propagation* ist eine exakte Lösung der paraxialen Näherung der SCHRÖDINGER-Gleichung für die freie Bewegung eines Elektrons. Streicht man nämlich in dieser

$$\left\{ \Delta + \frac{2m}{\hbar^2} \partial_t \right\} \psi(\mathbf{r}, t) = 0$$

die axiale Komponente  $\partial_z^2$  und ersetzt die Zeitvariable dafür durch  $t = z/\gamma v$ , so bekommt man als paraxiale Näherung der SCHRÖDINGER-Gleichung eine Differentialgleichung für die lateralen Komponenten

$$\left\{ \Delta_\rho + 2i \frac{m\gamma v}{\hbar} \partial_z \right\} \psi(z; \boldsymbol{\rho}) = \left\{ \Delta_\rho + 2ik \partial_z \right\} \psi(z; \boldsymbol{\rho}) = 0.$$

Diese löst man am besten durch FOURIER-Transformation, denn

$$2ik \partial_z \psi(z; \mathbf{s}) = \mathbf{s}^2 \psi(z; \mathbf{s})$$

hat einfach

$$\psi(z; \mathbf{s}) = \exp \left\{ -i \frac{z}{2k} \mathbf{s}^2 \right\} \psi(0; \mathbf{s}) = F(z; \mathbf{s}) \psi(0; \mathbf{s})$$

zur Lösung. Die Rücktransformation in den Ortsraum

$$\psi(z; \boldsymbol{\rho}) = \int F(z; \boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}') \psi(0; \boldsymbol{\rho}') d\mathbf{f}_{\rho'}$$

ist daher eine FRESNEL-Propagation über die Distanz  $z$ .

Diese heuristische Ableitung kann man selbstverständlich auch formal exakt durchführen. Zu dem Ende setzt man in die SCHRÖDINGER-Gleichung für die freie Bewegung eines Elektrons

$$\{\Delta + \mathbf{k}^2\} \psi(\mathbf{r}) = 0$$

den Ansatz  $\psi(\mathbf{r}) = A(\mathbf{r}) e^{ikz}$  ein und bekommt damit für die Amplitude  $A(\mathbf{r})$  die Differentialgleichung

$$\{\Delta_{\rho} + \partial_z^2 + 2ik \partial_z\} A(\mathbf{r}) = 0.$$

Streicht man hier wieder die zweite Ableitung nach der axialen Komponente  $\partial_z^2$  und führt Zylinderkoordinaten  $\mathbf{r} = (\boldsymbol{\rho}, z)$  ein, so bekommt man wie oben für die Amplitude  $A$  die Lösung

$$A(z; \boldsymbol{\rho}) = \int F(z; \boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}') A(0; \boldsymbol{\rho}') d\mathbf{f}_{\rho'}$$

und damit für die gesuchte Wellenfunktion den Ausdruck  $\psi(z; \boldsymbol{\rho}) = e^{ikz} A(z; \boldsymbol{\rho})$ , der sich von der heuristischen Lösung nur um jenen Phasenfaktor  $e^{ikz}$  unterscheidet, den wir fernerhin fortlassen wollten.

Daß die FRESNEL-Propagation eine exakte Lösung der paraxialen Näherung der SCHRÖDINGER-Gleichung für die freie Bewegung eines Elektrons sogar für beliebig kleine Distanzen  $z$  ist, sollte man natürlich nicht überbewerten. Insbesondere ist das kein Qualitätsmerkmal für die Güte der FRESNEL-Propagation. An der grundsätzlich festzustellenden Voraussetzung, daß alle lateralen Komponenten im Orts- wie im Impulsraum, klein gegen die entsprechenden transversalen Komponenten sein müssen, ändert dieses Ergebnis nicht das geringste Jota. Für die Güte der FRESNEL-Propagation kommt es vielmehr darauf an, daß der Amplitudenfaktor  $\psi(z; \boldsymbol{\rho})$  in der Gleichung (5.1) effektive Beiträge zum Wert des Integrals nur in einer engen Umgebung um die  $z$ -Achse hat, und das dies in der Folge auch so bleibt. Daß das in der Folge so bleibt, erfordert physikalisch, daß im Zuge der Propagation der Elektronenwelle durch das Elektronenmikroskop und des Durchgangs durch das abzubildende Objekt nur kleine laterale Impulsüberträge auftreten dürfen. Dies ist der Grund dafür, warum wir bei der heuristischen Ableitung die Zeitvariable durch  $t = z/\gamma v$  ersetzen durften. Es ist das dieselbe Approximation, die man in der klassischen Mechanik bei der Behandlung der Streuung unter kleinen Winkeln macht: Man nimmt bei der Berechnung des lateralen Impulsübertrages an, daß das Teilchen überhaupt nicht von seiner ursprünglichen Bahn abgelenkt wird und sich geradlinig und gleichförmig bewegt. Wenn aber bei einem endlichen, von Null verschiedenen Abstand  $\Delta z = a$  der beiden Ebenen voneinander, der Amplitudenfaktor  $\psi(z; \boldsymbol{\rho})$  auch für Abstände  $\boldsymbol{\rho}$  von der  $z$ -Achse groß gegen den Abstand  $a$  nicht merklich Null ist, so liefern die beiden Integrale (5.1) und (5.2) merklich verschiedene Ergebnisse voneinander. Für diesen Fall liefert die FRESNEL-Propagation

also falsche Ergebnisse, was aber wegen Verstoßes gegen die Voraussetzungen zu erwarten war. Um das einsichtig zu machen, nehmen wir für den Amplitudenfaktor  $\psi(z; \rho)$  die Hyperbelfunktion  $1/\rho$ . Wenn wir außerdem noch speziell den Punkt P als auf der  $z$ -Achse liegend annehmen, dann wird (5.2) zu dem FRESNEL-Integral

$$\frac{e^{ika}}{a} \int_0^\infty \exp \left\{ i \frac{k}{2a} \rho^2 \right\} d\rho = \frac{e^{ika}}{2a} \sqrt{\frac{2\pi ai}{k}} = \int_a^\infty \frac{e^{iku}}{\sqrt{2a(u-a)}} du.$$

Hingegen lautet (5.1) in diesem Fall

$$a \int_0^\infty \frac{e^{ik\sqrt{\rho^2+a^2}}}{\rho^2+a^2} \left\{ 1 + \frac{i\lambda/2\pi}{\sqrt{\rho^2+a^2}} \right\} d\rho = \int_a^\infty \frac{e^{iku}}{\sqrt{2a(u-a)}} \frac{a\sqrt{2a}}{u\sqrt{u+a}} \left\{ 1 + \frac{i}{ku} \right\} du.$$

Man sieht, daß im Bereich  $u \simeq a$ , also für kleine laterale Abstände, die beiden Integranden fast übereinstimmen, wobei die paraxiale Näherung zu große Werte liefern wird.

Für die Anwendbarkeit der Formel (5.2) müssen wir also fordern, daß die relevanten Bündeldurchmesser der Elektronenwelle überall klein gegen  $a$  sind, und damit das auch so bleibt, dürfen bei der Streuung im Objekt nur kleine laterale Impulsüberträge auftreten.

Andererseits haben wir das scheinbar seltsame Ergebnis, daß bei einer ebenen Welle, also bei einer konstanten Amplitude auf der Ebene  $z'$ , sowohl die Gleichung (5.1)

$$\int \frac{e^{ikr}}{i\lambda r} \left\{ 1 + \frac{i\lambda}{2\pi r} \right\} \frac{2\pi a}{r} r dr = \frac{2\pi a}{i\lambda} \left[ \frac{e^{ikr}}{ikr} \right]_a^\infty + \int \frac{e^{ikr}}{i\lambda r} \left\{ -\frac{i\lambda}{2\pi r} + \frac{i\lambda}{2\pi r} \right\} \frac{2\pi a}{r} r dr = e^{ika}$$

als auch die FRESNEL-Propagation (5.2)

$$\frac{e^{ika}}{i\lambda a} \int \exp \left\{ i \frac{k}{2a} (\rho - \rho')^2 \right\} df_{\rho'} = e^{ika}$$

die Amplitude auf  $z = a$  exakt reproduziert. Aber man sieht zugleich auch, daß das aus zwei voneinander ganz verschiedenen Gründen stattfindet. Denn im zweiten Fall ergibt ein Ansatz der Form  $\psi(\mathbf{r}) = A \cdot \exp(ikz)$  mit einer konstanten Amplitude  $A$  in der exakten Differentialgleichung für die freie Bewegung des Elektrons natürlich auch eine exakte Lösung dieser Differentialgleichung. Das gilt natürlicherweise auch für die paraxiale Approximation dieser Differentialgleichung. Auch sie muß bei einer konstanten Amplitude des Ansatzes eine konstante Amplitude, und zwar mit gleicher Größe, zur Lösung haben. Es sind das gewissermaßen die trivialen Lösungen dieser Gleichungen. Dieser, gar nicht so verwunderliche Zufall, sagt daher meiner Meinung nach eigentlich gar nichts über die Güte der Approximation aus, wenn die Amplitude nicht konstant ist. Es mag aber immerhin sein, daß ein Kriterium der Art

$$\frac{s\rho}{k_z z} \ll 1 \quad \rightsquigarrow \quad \rho \ll \frac{k_z}{s} z, \quad (5.5)$$

welches auf relativ langsame Variationen in lateraler Richtung im Vergleich zur longitudinalen Richtung abzielt, die Verhältnisse besser beschreibt als die Forderung  $\rho \ll z$ . Für die ebene Welle würde das mit  $s = 0$  bedeuten  $\rho \ll \infty$ , die für jeden beliebigen endlichen lateralen Abstand erfüllt ist.

## 5.2 Propagation durch das Linsensystem

Die Propagation durch das Linsensystem zerfällt in fünf Einzelschritte. Zunächst erfolgt eine FRESNEL-Propagation um die Gegenstandsweite  $g$  von der Ebene  $z_O$  zur Ebene der Objektivlinse  $z_L$

$$\psi(z_L; \boldsymbol{\rho}_L) = \int F(g; \boldsymbol{\rho}_L - \boldsymbol{\rho}_O) \psi(z_O; \boldsymbol{\rho}_O) d\boldsymbol{\rho}_O.$$

Das Ergebnis ist sodann mit der Transmissionsfunktion einer idealen Linse zu multipli-

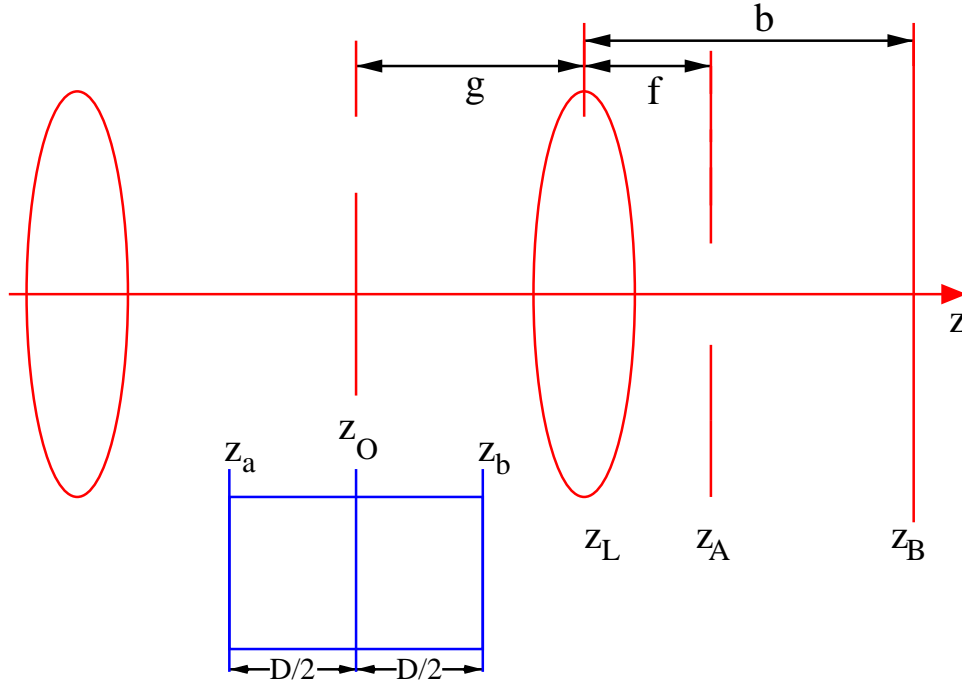


Abbildung 5.2: Schema eines Transmissionselektronenmikroskops (TEM). In der Ebene  $z = z_O$  liegt das Objekt. Unterhalb von  $z_O$  ist eine Ausschnittsvergrößerung dieser Ebene mit dem Objekt zu sehen. Das Objekt der Dicke  $D \ll \min(g, f, b)$  wurde darin willkürlich als zentriert liegend angenommen. Die Größen  $g, f, b$  sind die Gegenstands-, Brenn- (Fokus-) und Bildweite. Dies sind makroskopische Größen von einigen Millimetern, während die Dicke  $D$  des Objektes eine mikroskopische Größe von etwa 100 nm oder weniger ist. Die Linse vor dem Objekt symbolisiert die Beleuchtungseinheit, den Kondensor.

zieren und um die Brennweite  $f$  der Linse weiter bis zur Brenn- oder Beugungsebene der Linse zu propagieren. Da die Transmissionsfunktion einer idealen Linse durch

$$T_L(\boldsymbol{\rho}_L) = \exp \left\{ -i \frac{k}{2f} \boldsymbol{\rho}_L^2 \right\} \quad (5.6)$$

gegeben ist, ergibt das

$$\psi(z_A; \boldsymbol{\rho}_A) = \int F(f; \boldsymbol{\rho}_A - \boldsymbol{\rho}_L) \left[ T_L(\boldsymbol{\rho}_L) \left\{ \int F(g; \boldsymbol{\rho}_L - \boldsymbol{\rho}_O) \psi(z_O; \boldsymbol{\rho}_O) d\boldsymbol{\rho}_O \right\} \right] d\boldsymbol{\rho}_L. \quad (5.7)$$

In der Beugungsebene werden die durch eine nichtideale Linse verursachten Fehler (Aberrationen) durch eine Phasenfunktion  $\gamma(\epsilon; \boldsymbol{\rho}_A)$  berücksichtigt:

$$T_A(\boldsymbol{\rho}_A) = A(\boldsymbol{\rho}_A) e^{-i\gamma(\epsilon; \boldsymbol{\rho}_A)} \quad (5.8)$$

mit

$$\frac{\gamma(\epsilon; \boldsymbol{\rho}_A)}{k} = \frac{1}{4} C_3 \vartheta^4 - \frac{1}{2} \delta f \vartheta^2 + \frac{1}{6} C_5 \vartheta^6 + \&c - \frac{\epsilon}{2E} C_C \vartheta^2 \pm \&c, \quad \vartheta = \left| \frac{\boldsymbol{\rho}_A}{f} \right|. \quad (5.9)$$

Die Funktion  $A(\boldsymbol{\rho}_A)$  beschreibt dabei den Einfluß einer Objektivaperturblende. Die Fehlerkonstante  $C_3$  des Öffnungsfehlers der Linse wird oft auch mit  $C_S$  von S wie Sphärische Aberration bezeichnet, und die Defokussierung  $\delta f$  mit  $C_1$ . In dem letzten Term bezeichnet  $E$  die zu  $k$  korrespondierende kinetische Energie des Elektrons und  $\epsilon = E' - E$  eine Abweichung der kinetischen Ist-Energie  $E'$  des Elektrons von der Soll-Energie  $E$ . Bei einem eventuellen (positiv zu zählenden) Energieverlust  $\delta\epsilon$  durch inelastische Streuung des Elektrons im Objekt wäre also  $E' = E - \delta\epsilon \Rightarrow \epsilon = -\delta\epsilon$ . Ferner ist  $C_C$  die Farbfehlerkonstante. Der letzte Schritt ist eine FRESNEL-Propagation über die Distanz  $b - f$  von der Beugungsebene zur Bildebene  $z_B$ .

$$\psi(z_B; \boldsymbol{\rho}_B) = \int F(b - f; \boldsymbol{\rho}_B - \boldsymbol{\rho}_A) T_A(\boldsymbol{\rho}_A) \psi(z_A; \boldsymbol{\rho}_A) d\boldsymbol{\rho}_A. \quad (5.10)$$

Den Ausdruck (5.7) für die Wellenfunktion in der Beugungsebene kann man auch folgendermaßen schreiben<sup>1</sup>:

$$\psi(z_A; \boldsymbol{\rho}_A) = \frac{\exp \left\{ \frac{ik}{2} (f - g) (-\boldsymbol{\rho}_A/f)^2 \right\}}{i\lambda f} \times \quad (5.11)$$

$$\begin{aligned} & \int \psi(z_O; \boldsymbol{\rho}_O) \exp \left\{ -ik (\boldsymbol{\rho}_A/f) \boldsymbol{\rho}_O \right\} d\boldsymbol{\rho}_O \\ &= \frac{\exp \left\{ \frac{ik}{2} (f - g) (-\boldsymbol{\rho}_A/f)^2 \right\}}{i\lambda f} \varphi(\boldsymbol{\rho}_A). \end{aligned} \quad (5.12)$$

Die Exponentialfunktion vor dem Integral (5.11) ist für das Beugungsbild  $|\psi(z_A; \boldsymbol{\rho}_A)|^2$  irrelevant.

Mit Hilfe der Newtonschen Linsenformel [[94], Axiom 6, 3. Fall]  $(b - f)(g - f) = ff$  lassen sich schließlich in Formel (5.10) noch einige Ausdrücke zusammenfassen<sup>2</sup>, sodaß

<sup>1</sup>Wenn wir die Integrationsreihenfolge vertauschen

$$\psi(z_A; \boldsymbol{\rho}_A) = \int d\boldsymbol{\rho}_O \psi(z_O; \boldsymbol{\rho}_O) \int F(f; \boldsymbol{\rho}_A - \boldsymbol{\rho}_L) T_L(\boldsymbol{\rho}_L) F(g; \boldsymbol{\rho}_L - \boldsymbol{\rho}_O) d\boldsymbol{\rho}_L$$

und bemerken, daß sich eine FRESNEL-Propagation auch durch eine einzige Fourier-Transformation gemäß

$$\int F(z; \boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}') f(\boldsymbol{\rho}') d\boldsymbol{\rho}' = \exp \left\{ i \frac{k}{2z} \boldsymbol{\rho}^2 \right\} \int f(\boldsymbol{\rho}') F(z; \boldsymbol{\rho}') \exp \left\{ -i \frac{k}{z} \boldsymbol{\rho} \boldsymbol{\rho}' \right\} d\boldsymbol{\rho}'$$

ausdrücken läßt, vereinfacht sich die Integration über  $\boldsymbol{\rho}_L$ , da sich nun die Linsentransmissionsfunktion  $T_L(\boldsymbol{\rho}_L)$  gegen die FRESNEL-Funktion  $F(f, \boldsymbol{\rho}_L)$  bis auf den konstanten Faktor  $1/i\lambda f$  aufhebt, sodaß man lediglich noch die Fourier-Transformierte der verbleibenden FRESNEL-Funktion  $F(g; \boldsymbol{\rho}_L - \boldsymbol{\rho}_O)$  berechnen muß, was mit Hilfe der Formel (G.18) auf Seite 157 schließlich ergibt:

$$\int F(g; \boldsymbol{\rho}_L - \boldsymbol{\rho}_O) \exp \left\{ -i \frac{k}{f} \boldsymbol{\rho}_A \boldsymbol{\rho}_L \right\} d\boldsymbol{\rho}_L = \exp \left\{ -i \frac{k}{f} \boldsymbol{\rho}_O \boldsymbol{\rho}_A \right\} \exp \left\{ -i \frac{k}{2} \frac{g}{f^2} \boldsymbol{\rho}_A^2 \right\}.$$

Zusammengefaßt finden wir so die Formel (5.11).

<sup>2</sup>Es ist im Integranden

$$\exp \left\{ \frac{ik}{2} (f - g) (-\boldsymbol{\rho}_A/f)^2 \right\} \exp \left\{ \frac{ik}{2(b - f)} \boldsymbol{\rho}_A^2 \right\} = 1.$$

man statt dessen auch

$$\psi(z_B; \boldsymbol{\rho}_B) = -\frac{\exp\left\{\frac{ik}{2(b-f)} \boldsymbol{\rho}_B^2\right\}}{\lambda^2(b-f)f} \int T_A(\boldsymbol{\rho}_A) \varphi(\boldsymbol{\rho}_A) \exp\{-ik(\boldsymbol{\rho}_B/(b-f)) \boldsymbol{\rho}_A\} d\boldsymbol{\rho}_A \quad (5.13)$$

schreiben kann. Dabei hat die Exponentialfunktion vor dem Integral wieder keine Auswirkung auf die Bildintensität  $|\psi(z_B; \boldsymbol{\rho}_B)|^2$ .

Man kann daher Bild und Beugungsbild auch gleich als einfache Fourier-Transformationen berechnen, wie das bei den Implementationen [66][67][120] des Multislice-Verfahrens üblich ist. Wir identifizieren dabei die laterale Impulskoordinate  $\boldsymbol{s}$  als

$$\boldsymbol{s} = k \frac{\boldsymbol{\rho}_A}{f}, \quad \vartheta = \left| \frac{\boldsymbol{s}}{k} \right| = \left| \frac{\boldsymbol{\rho}_A}{f} \right| \quad (5.14)$$

und setzen

$$b - f \stackrel{!}{=} f \quad \& \quad \lambda f \stackrel{!}{=} 1. \quad (5.15)$$

Dann bekommen wir die Abbildungsoptik, die in den Multislice-Programmen verwendet wird:

$$\psi(z_A; \boldsymbol{s}) = \int \psi(z_O; \boldsymbol{\rho}) e^{i\boldsymbol{s}\boldsymbol{\rho}} d\boldsymbol{\rho} = \hat{\mathcal{F}}\psi(z_O; \boldsymbol{\rho}), \quad (5.16)$$

und

$$\psi(z_B; \boldsymbol{\rho}) = \int T_A(\boldsymbol{s}) \psi(z_A; \boldsymbol{s}) e^{-i\boldsymbol{s}\boldsymbol{\rho}} \frac{d\boldsymbol{s}}{(2\pi)^2} = \hat{\mathcal{F}}^{-1}\{T_A(\boldsymbol{s}) \psi(z_A; \boldsymbol{s})\}. \quad (5.17)$$

Die in dieser Form auftretende Rotation des Beugungsbildes um  $180^\circ$  spielt dabei praktisch keine Rolle. Das Beugungsbild ist somit einfach die 2-dimensionale Fourier-Transformierte der Austrittswellenfunktion und das Bild ist die inverse Fourier-Transformierte der mit der Blendenfunktion und den Linsenfehlern modifizierten Wellenfunktion der Beugungsebene. Das entspricht einer teleskopischen Abbildung mit dem Abbildungsmaßstab  $b/g = 1$ , da mit  $b = 2f$  auch  $g = 2f$  sein muß. Wir hatten dabei übrigens keine Rücksicht auf die genaue Lage des Objektes „in“ der Objektebene  $z_O$  genommen. Diese Abbildungsoptik der Multislice-Programme hat zur Konsequenz, daß das Objekt vollständig links von der Objektebene  $z_O$  liegt. Bei der unten diskutierten konvergenten Beleuchtung der Objektebene liegt das Objekt hingegen vollständig rechts von der Objektebene.

Man kann sich anhand der Exponentialfunktion in (5.11) verdeutlichen, wie man die Defokussierung  $\delta f$  in (5.9) zu deuten hat. Wegen dieses Terms tritt bei der Abbildung einer Ebene  $z'_O = z_O \mp a$  ( $\Leftrightarrow g \mapsto g \pm a$ ) in dem Integral (5.13) ein zusätzlicher Phasenfaktor

$$\exp\left\{\mp \frac{ik}{2} a (\boldsymbol{\rho}_A/f)^2\right\} \quad (5.18)$$

auf. Die Ebene  $z'_O = z_O \mp a$  kann man also durch eine Defokussierung  $\delta f = \pm a$  scharf stellen (fokussieren), da sich dann diese beiden Terme gegenseitig aufheben. Daher haben wir:

Gilt für die abzubildende Ebene  $z'_O > z_O$ , die Ebene liegt also wegen  $a < 0$  näher zur Objektivlinse hin, so ist  $\delta f < 0$ . Für  $z'_O < z_O$  ist  $a > 0$  und damit auch  $\delta f > 0$ .



Wie es der Name „Defokussierung“ schon andeutet, bedeutet eine Defokussierung eigentlich eine Änderung der Brennweite  $f$  der Linse, sodaß die obige Interpretation nicht streng richtig sein kann. Aus den Datenblättern der Hersteller von Elektronenmikroskopen kann man aber die Information entnehmen, daß die Brennweite  $f$  eines Elektronenmikroskopes die Größenordnung mm hat. Typische Werte für die „Defokussierungen“ liegen im Bereich von  $\sqrt{1.5 C_3 \lambda}$ .<sup>3</sup> Das ergibt also bei einem typischen  $C_3$ -Wert eines unkorrigierten Elektronenmikroskopes von 2.5 mm und einer (eher kleinen) Beschleunigungsspannung von 100 kV ( $\Rightarrow \lambda = 3.7$  pm) etwa  $\delta f = 120$  nm.<sup>4</sup> In der Reihenentwicklung  $\gamma(\rho_A, \epsilon)$  wird also der Wert von  $f$  invariant sein, während dafür dann ein neuer Entwicklungsterm auftaucht, der diese kleine Änderung der Brennweite beschreibt.

Der Term  $\frac{\epsilon}{2E} C_C \vartheta^2$  in dem Ausdruck (5.9) trägt den Abbildungsfehlern Rechnung, die durch eine Abweichung der kinetischen Ist-Energie von der Soll-Energie verursacht werden. Für diese Energieabweichung kommt zum einen die inelastische Streuung des Elektrons im Objekt in Frage, zum anderem treten aber auch die Elektronen aus der Elektronenquelle nicht alle mit der kinetischen Soll-Energie  $E$  aus. Eine solche Situation bedeutet wieder, daß dem Elektron keine Wellenfunktion, sondern nur eine gemischte Dichte der Verteilung der Koordinaten und zwar diesmal vor dem Objekt zukommt. Nach den im vorherigen Kapitel entwickelten Prinzipien muß man in diesem Fall wieder den Erwartungswert der Intensität in der Bild- und Beugungsbildebene bilden. Das ist genau besehen eigentlich gar nichts Besonderes, da man dies prinzipiell immer in allen Fällen so halten muß. Für den Fall, daß es konstante Phasenbeziehungen zwischen den Teilwellen gibt, fällt der Spezialfall der kohärenten Überlagerung der Teilwellen dabei ganz von allein heraus. In unserem Fall hier müßten wir nun die Bilder, die entstehen, wenn Elektronen jeder möglichen kinetischen Energie mit dem Objekt wechselwirken und durch das Linsensystem abgebildet werden, gewichtet aufaddieren. Die von der Quelle herrührenden Energieabweichungen liegen aber in der Größenordnung 1 eV. Es stellt daher eine gute Näherung dar, wenn wir für das Objekt nur Elektronen berücksichtigen, die die Soll-Energie haben, und die inkohärente Mittelung nur über den Abbildungsteil durchführen.<sup>5</sup> Dies paßt ausgezeichnet zur Hochenergie-Näherung für die inelastische Streuung, da in ihr ja der Energieverlust, den das Elektron bei seinem Durchgang durch das Objekt erlitten hat, für die Rechnung komplett ignoriert wird. Wenn man für die aus der Quelle austretenden Elektronen eine Gaussverteilung  $p(\epsilon)$  der Energieabweichung  $\epsilon$  unterstellt, dann kann man diese Mittelung effizient mit Hilfe einer Gauss-Hermite'schen Quadraturformel durchführen. Bezeichnen wir etwa mit

$$\psi_k^{lj}(z_A; \rho)$$

die  $k$ -te Partialwelle des  $l$ -ten Atoms in der Beugungsbildebene, welche aus dem  $j$ -ten

<sup>3</sup>Das ist der sogenannte Scherzer-Defokus. Der Defokusterm arbeitet in (5.9) ja dem Öffnungsfehler-Term entgegen, hat aber nicht die gleiche Abhängigkeit von  $\theta$  wie dieser. Der obige Wert gibt einen bestmöglichen Kompromiß an, um die Abbildungsfehler zu minimieren.

<sup>4</sup>Die minimal möglichen Defoki sind typischerweise etwa 1-2 nm.

<sup>5</sup>Die Wechselwirkungskonstante für die elastische und thermisch diffuse Streuung  $\varsigma = \gamma\lambda$  ändert sich mit einer Änderung der kinetischen Energie des Elektrons um  $\delta\epsilon$  nur um  $\delta\varsigma = -\varsigma\delta\epsilon/\gamma E$ . Dies ist also in dem für uns interessanten Energiebereich um mehr als 5 Größenordnungen kleiner als die absolute Änderung  $\delta\epsilon$ . Hingegen hat eine solch kleine Energieabweichung wegen der Größe des Produktes der Fehlerkonstanten in (5.9) mit dem Betrag des Wellenvektors  $k$  einen recht merklichen Einfluß auf das Bild. Diesen müssen wir daher auch berücksichtigen. Nebenbei sei angemerkt, daß in der Klammer des Ausdrucks (5.9) im Nenner des letzten Terms  $\gamma E$  stehen müßte.

Scheibchen herrührt<sup>6</sup>, dann wäre der folgende Ausdruck zu berechnen:

$$\bar{I}_k^{lj}(z_B; \boldsymbol{\rho}) = \int p(\sigma_E; \epsilon) \left| \hat{\mathcal{F}}^- \left\{ T_A(\epsilon; \mathbf{s}) \psi_k^{lj}(z_A; \mathbf{s}) \right\} \right|^2 d\epsilon. \quad (5.19)$$

Dabei haben wir hier die bislang unterdrückte Energieabhängigkeit der Linsentransmissionsfunktion  $T_A(\epsilon; \mathbf{s})$  explizit angeschrieben. Weiterhin ist darin in der Gaussfunktion

$$p(\sigma_E; \epsilon) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sigma_E} \exp \left\{ -\frac{1}{2} (\epsilon/\sigma_E)^2 \right\} \quad (5.20)$$

die Varianz  $\sigma_E = (0.5 \cdot \Delta E)/\sqrt{2 \ln 2} \approx 0.425 \cdot \Delta E$  einzusetzen und nicht deren üblicherweise angegebene volle Halbwertsbreite (FWHM) von  $\Delta E \approx 1.5$  eV für thermische LaB<sub>6</sub>, bzw.  $\Delta E \approx 0.5$  eV für Feldemissionskathoden.<sup>7</sup> Bei der numerischen Auswertung des Integrals mit einer Gauss-Hermite'schen Quadraturformel ergibt das dann

$$\bar{I}_k^{lj}(z_B; \boldsymbol{\rho}) = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \sum_{r=-o}^{+o} w_r \left| \hat{\mathcal{F}}^- \left\{ T_A(\sqrt{2} \sigma_E \cdot s_r; \mathbf{s}) \psi_k^{lj}(z_A; \mathbf{s}) \right\} \right|^2, \quad (5.21)$$

worin  $w_r, s_r$  die (dimensionslosen) Gewichte und Stützstellen der Gauss-Hermite'schen Quadraturformel der Ordnung  $O = 2o + \text{Mod}(o, 2)$  sind [[3], Tabelle 25.10]. Zweckmäßigerweise wird man hier eine Quadraturformel von ungerader Ordnung  $O \geq 5$  wählen.

Um den Effekt der durch inelastische Streuung im Objekt verursachten Energieabweichung auf den Abbildungsvorgang zu modellieren, kann man hierfür ein schematisches Energie-Verlust-Spektrum berücksichtigen. Man wird dafür, genauso wie oben bei der Gauss-Hermite'schen Quadraturformel, eine Liste mit Gewichten und Stützstellen  $\{w_r, s_r\}$  vorsehen, so, daß  $\sum_r w_r = 1$  ist, und die Stützstelle  $s_r$  dem für den Abbildungsvorgang zu berücksichtigenden Energieverlust  $\Delta E_r$  entspricht. Dabei sind dann wie oben die einzelnen Partialwellen  $k$  für das Objekt nur ein einziges Mal auszurechnen gemäß dem Umstand, daß in der Hochenergie-Näherung der Energieverlust im Objekt in der Rechnung korrekterweise nicht zu berücksichtigen ist. Die aus historischen Gründen beim Simulationsprogramm **YaMS** verwendete Möglichkeit, für das Objekt und die Linsenfehler den gleichen Energieverlust von  $\Delta E = 6Z$  eV in Rechnung zu setzen, ist eigentlich in doppelter Weise unrichtig. Erstens muß man in dem Ausdruck (4.47) für  $\mu_{11}^{\text{in}}(\mathbf{s}, \mathbf{s}')$  von der logischen Stringenz der Rechnung her den lateralen Impulsübertrag verwenden, wie im Anhang B gezeigt wird. Zum anderen wäre ein solcher das Objekt charakterisierender Energieverlust wie  $\Delta E = 6Z$  in keinsten Weise für die durch die Energieabweichung verursachten Abbildungsfehler der Linse charakteristisch, da diese beiden Teile logisch und physikalisch nicht das Geringste miteinander zu tun haben.

Schließlich unterstützt das Simulationsprogramm **YaMS** derzeit noch eine weitere unrichtige Methode, ein Energie-Verlust-Spektrum zu berücksichtigen. Dabei werden dann die einzelnen Partialwellen  $k$  für jeden Energieverlust neu berechnet und mit genau demselben Wert des Energieverlustes und demselben Gewicht durch das Abbildungssystem propagiert. Auch diese Methode ist vom theoretischen Standpunkt aus dubios und daher als obsolet zu bezeichnen.<sup>8</sup>

<sup>6</sup>Wir könnten etwa vereinbaren, unter der Partialwelle  $k = -1, l = 0$  die elastische Streuwelle mit Berücksichtigung der *Absorption* in *jedem* der  $j$  Scheibchen des Objektes zu verstehen, und fernerhin noch unter  $j = -1$  die rein elastische Streuwelle.

<sup>7</sup>Aus historischen Gründen heißt der entsprechende Parameter für die Varianz  $\sigma_E$  der Energieabweichungen der Elektronenquelle bei **YaMS** sinnigerweise „DeltaE“.

<sup>8</sup>Es wird daher empfohlen, diese beiden Programm-Modi (Modus 0 und 2) nicht mehr weiter zu nutzen, sondern ausschließlich den Modus 1. Die beiden ersten Modi werden möglicherweise bei einer zukünftigen Version des Programmes verschwinden bzw. eine andere Bedeutung erhalten.

In der Abbildung 5.2 gibt es vor dem Objekt eine weitere, bislang unerwähnt gebliebene Linse. Diese soll die Beleuchtungseinrichtung des Elektronenmikroskops – den sogenannten Kondensor – darstellen. Bislang sollte dieser für eine Bestrahlung des Objektes bzw. der Objektebene  $z_O$ , mit einer kohärenten, ebenen Welle sorgen. Dies ist in praxi aufzufassen als eine bündelbegrenzte Beleuchtung über einen makroskopischen Bereich mit einem Durchmesser von etwa  $1\ \mu\text{m}$ , also etwa 10000 Atomdurchmessern.

Eine andere Art der Beleuchtung der Objektebene  $z_O$  ist die durch ein einfallendes, kohärentes und konvergentes Bündel. Nach P. Debye stellt man dazu den einlaufenden Teilchenstrahl als Superposition konfokal einfallender ebener Wellen dar. Also wenn wir von den Linsenfehlern absehen könnten:

$$\psi(z_O; \boldsymbol{\rho}) = \frac{1}{\Omega_\alpha} \int_{K_\alpha} e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}} d\Omega. \quad (5.22)$$

Wobei das Integral über den Kegel  $\Omega_\alpha$  um die negative  $z$ -Achse mit dem halben Öffnungswinkel  $\alpha$  zu erstrecken ist. Der Vorfaktor sorgt für die korrekte Normierung der einfallenden Intensität auf 1.

In paraxialer Näherung und bei Berücksichtigung der Linsenfehler in der Beugungsebene des Kondensors durch eine Linsentransmissionsfunktion  $T_K(\epsilon; \mathbf{s})$  ergibt diese Art der Beleuchtung einen Ausdruck analog zu Formel (5.17):

$$\psi(\epsilon, \boldsymbol{\rho}_p, z_O; \boldsymbol{\rho}) = \kappa \cdot \hat{\mathcal{F}}^- \left\{ T_K(\epsilon; \mathbf{s}) \hat{\mathcal{F}} \delta(\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}_p) \right\}. \quad (5.23)$$

Der Vorfaktor  $\kappa$  sorgt für die korrekte Normierung der einfallenden Intensität auf 1 und  $\boldsymbol{\rho}_p$  bezeichnet den Punkt auf der Objektebene  $z_O$ , auf den fokussiert werden soll.

Wie zum Beispiel in [90] dargestellt, erfolgt die reale Beleuchtung der Objektebene  $z_O$  im Elektronenmikroskop alles andere als kohärent. Wir haben daher schon an der Eintrittsebene des Objektes eigentlich keine Situation vorliegen, die sich durch eine Wellenfunktion für das einfallende Elektron beschreiben ließe, sondern eine solche, die durch eine gemischte Dichte der Verteilung der Koordinaten des Elektrons  $\varrho(z_O, \boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}')$  beschreiben werden muß. Diese Situation ist nun höchst mißlich, da der in [90] dafür angegebene Ausdruck für die numerische Auswertung, also eine Zerlegung in eine Summe von 2-dimensionalen Produkten, völlig unbrauchbar ist. Andererseits kommt mit den heute verfügbaren Rechnern auch die „Hau drauf“-Methode, eine inkohärente Überlagerung konfokal einfallender ebener Wellen dadurch darzustellen, daß man halt jede einzelne ebene Welle separat durchrechnet, für die Zwecke der inelastischen Bildsimulation nicht in Frage. Das wäre allenfalls für den elastischen bzw. kohärenten Anteil möglich.

Da mir also keine machbare Methode hierfür bekannt ist, erfolgt die Beleuchtung der Objektebene  $z_O$  in dem Simulationsprogramm **YaMS** immer streng kohärent, auch wenn wir wissen, daß das so nicht richtig ist.

# Kapitel 6

## Aspekte der Realisation

*SALV. [ . . . ] Uns muss es genügen, dass wir jene weniger erhabenen Werkleute sind, die aus dem Schachte den Marmor hervorsuchen und herbeischaffen, aus welchem später die genialen Bildhauer Wunderwerke erzeugen, die unter rauher ungeformter Hülle verborgen lagen.*

*(Galilei, Discorsi (1638), 3.-ter Tag)*

Bei Betrachtung der Formel (4.64) drängen sich einem zwei Fragen auf:

- (1) Konvergiert die Reihenentwicklung (4.61) hinreichend schnell, sodaß die ersten paar Terme eine gute Approximation der Summe darstellen?
- (2) Gesetzt, daß der Punkt (1) zutrifft, würde dann nicht die schnell recht beträchtlich werdende Anzahl von zu berücksichtigenden Atomen des Objekts, deren Partialwellen  $k$  gemäß Formel (4.64) separat durch das Objekt zu propagieren sind und deren Intensität anschließend zu summieren ist, das ganze Verfahren unbrauchbar machen?

In diesem Kapitel gehe ich zunächst auf die Antworten ein, die wir auf diese beiden Fragen gefunden haben.

Sodann gebe ich die Ausdrücke für die exakte Ortsraumzerlegung der gemischt dynamischen Objekttransparenz  $M(\rho, \rho')$  für die thermisch diffuse Streuung bei Verwendung der analytischen Kurvenanpassung von Doyle-Turner und Kohl-Weickenmeier für die Elektronenstreuamplituden an. Diese Aufgabe hielt man früher für so schwierig, daß man hier zu einem etwas gewaltsamen Mittel griff [28]. Es wird sich ergeben, daß diese alte Faktorzerlegung bis in 1.-ter Ordnung („Dipolnäherung“) richtig ist, danach aber falsche Ergebnisse produziert. Die Anwendbarkeit dieser Entwicklung ist also davon abhängig, daß die Dipolnäherung die Verhältnisse gut beschreibt. Weiterführende Schlußfolgerungen z. B. für die Konvergenz der analogen Entwicklung (4.64) im Orts- und Fourierraum sind aber zu wiederholen. Es zeigt sich, daß die exakte Entwicklung nicht ganz so schnell konvergiert, wie man es nach der fehlerhaften Methode erschlossen hat. Man sieht an den Rechnungen zur Gewinnung einer exakten Ortsraumzerlegung abermals deutlich, welchen Vorteil die von mir eingeführte Methode der exakten Zerlegung im Fourierraum für das inelastische Multislice-Verfahren bringt. Es ist dies eines der Ingredienzien, die dieses Verfahren erst richtig praktikabel machen, da sich dadurch eine ganze Menge an (mehr oder weniger) schwierigen und manchmal undurchführbaren, analytischen Berechnungen einsparen läßt<sup>1</sup>. Dann gebe ich noch eine einfachere Ableitung für die Fourier-Transformierte  $\mu_2^{\text{TDS}}(s)$  des Absorptionspotentials  $\mu_2^{\text{TDS}}(\rho)$  für die Elektronenstreuamplitude nach Kohl-Weickenmeier, als man sie in [127] vorfindet.

---

<sup>1</sup> Von weiteren Ingredienzien handeln die Anhänge E und F.

Abschließend gehe ich noch wie versprochen auf die numerischen Details und Tücken einer Implementierung der Phasenschiebungsmatrix  $P$  gemäß der Gleichung (4.22) ein.

## 6.1 Konvergenz der Reihenentwicklung

Die Konvergenz der Reihenentwicklung (4.64) bzw. (4.61) überprüft man am besten durch Anwendung auf ein Objekt, welches nur aus einem einzigen Atom besteht.

Die folgenden Bilder eines einzelnen Siliziumatoms in der Mitte einer orthogonalen Einheitszelle mit den Abmessungen  $|a| = |b| = 30 \text{ \AA}$  und  $c_z = 3 \text{ \AA}$  wurden auf einer  $512 \times 512$ -Matrix bei 120 keV gerechnet. Die Abbildung erfolgte ideal (d. h. alle Bildfehlerkoeffizienten in (5.9) sind 0) und bei unterschiedlichen Werten für die Objektivapertur  $\Theta_0$ . Die folgenden Bilder sind ohne den Temperaturfaktor in Gleichung (4.47) berechnet worden. Zum einen deshalb, um sie im folgenden mit der Arbeit [28] vergleichen zu können, zum anderen, weil man diesen Temperaturfaktor bislang ignoriert hat. Es ist deshalb auch (noch) gar nicht im Programm **YaMS** implementiert.

Mit dem Temperaturfaktor bekommt man für die Reihenentwicklung der beiden zu subtrahierenden Terme in Gleichung (4.47) die Faktoren<sup>2</sup>

$$T_{nm,j}^l(s) = \frac{4\pi\alpha_S}{\beta} \sqrt{a_j} \frac{(\sqrt{b_j + u^2} s)^{|n|+2m}}{\sqrt{m!(m+|n|)!}} \frac{e^{-(b_j+u^2)s^2+in\varphi}}{(k\Theta_E)^2 + s^2}, \quad (6.1)$$

$$T_{nm,0}^l(s) = \frac{4\pi\alpha_S}{\beta} \frac{F(s)}{\sqrt{Z}} \frac{(us)^{|n|+2m}}{\sqrt{m!(m+|n|)!}} \frac{e^{-u^2s^2+in\varphi}}{(k\Theta_E)^2 + s^2}. \quad (6.2)$$

Wegen der zusätzlich notwendigen Reihenentwicklung der Röntgenstreuamplitude  $F(s)$  gemäß (4.51) im ersten Term gibt es von diesem (viermal + einen für  $j = 5$ ) mehr Terme als von dem zweiten Term. Wie erwähnt, läßt man bei der bislang verwendeten Form den Temperaturfaktor fort. Dies ist identisch damit, hier  $u = 0$  zu setzen, sodaß von  $T_{nm,0}^l(s)$  nur der Term mit  $n = m = 0$  verbleibt.

Aus den nachfolgenden Abbildungen 6.1 bis 6.2 entnimmt man bezüglich der Frage der Konvergenz der Reihenentwicklung für die Berechnung von inelastischen Bildern und Beugungsbildern die Aussage, daß man wenigstens die Entwicklungsterme bis einschließlich zweiter Ordnung für eine adäquate Simulation mitnehmen muß. Die Anzahl der dafür zu berechnenden Teilterme bei der inelastischen Bildberechnung beläuft sich dabei allgemein auf  $t_{\text{in}} = 6 + 2o(o+3)$  und  $t_{\text{TDS}} = o(o+3)/2$  im thermisch diffusen Fall. Darin ist die Entwicklungsordnung gegeben durch  $o = |n| + 2m$ . Im Falle  $o = 2$  sind das also  $26 + 5 = 31$  zu berechnende Teilterme pro Scheibchen und pro Atom bzw. Atomsorte. Man sieht auch, daß (mindestens) für mittlere Werte der Objektivapertur die höheren Entwicklungsordnungen signifikant beitragen und das qualitative Erscheinungsbild des Einzelatoms verändern. Der Kurvenverlauf für eine Objektivapertur von  $\Theta_0 = 5 \text{ mrad}$  (Abbildung 6.1) stimmt zwar mit dem Verlauf der entsprechenden Kurve in [28] auf Seite 54 qualitativ gut überein<sup>3</sup>, aber das Verhältnis der Maximalintensität der ersten Entwicklungsordnung  $o = 1$  (rote Kurve/zweite Kurve von unten) zu dem der nullten Ordnung (schwarze Kurve/erste Kurve von unten) von  $4.81/1.085 = 4.43$ <sup>4</sup> stimmt nicht mit dem entsprechenden Verhältnis bei [28] von etwa

<sup>2</sup>Der abgetrennte Index  $j$  bezieht sich hier auf die Terme  $j$  der Darstellung (4.51).

<sup>3</sup>Zur Bequemlichkeit des Lesers wird diese Seite hier in Abbildung 6.3 reproduziert.

<sup>4</sup>Das Verhältnis der Gesamtintensitäten ist  $6.29/0.971 = 6.48$ .

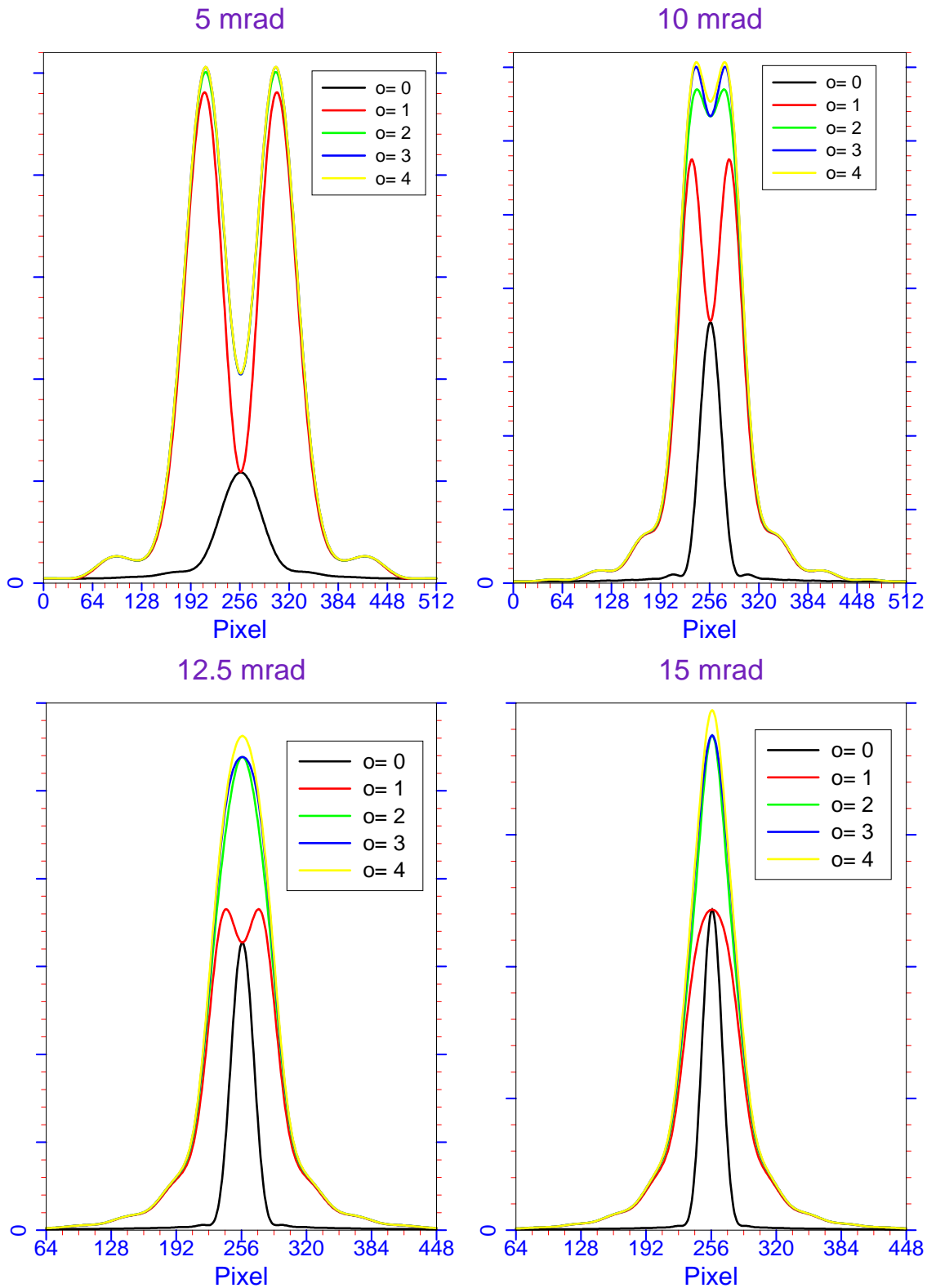


Abbildung 6.1: Intensitätsverlauf im inelastischen Bild eines Siliziumatoms bei idealer Abbildung ( $C_n = 0$  für alle  $n$ ),  $E = 120$  keV sowie unterschiedlichen Objektivaerturen. Darin bezeichnet  $o = |n| + 2m$  die Ordnung, bis zu der die Terme der Reihenentwicklung (4.64) bzw. (4.61) in der Rechnung berücksichtigt wurden. Auf der Abzisse ist die Ortskoordinate  $\rho$  als Funktion der Pixel-Nummer abgetragen.

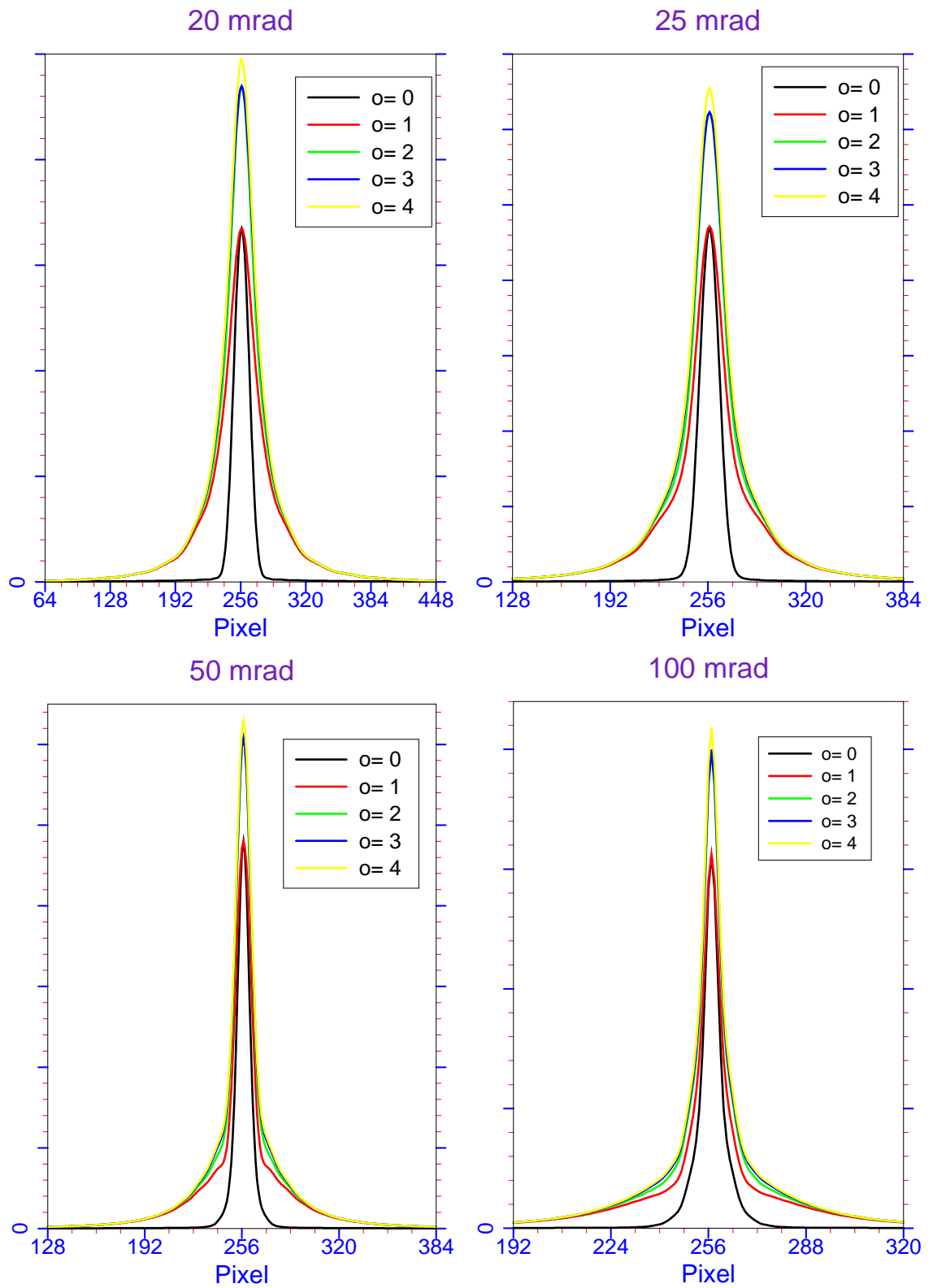


Abbildung 6.2: Siehe Legende zur Abbildung 6.1.

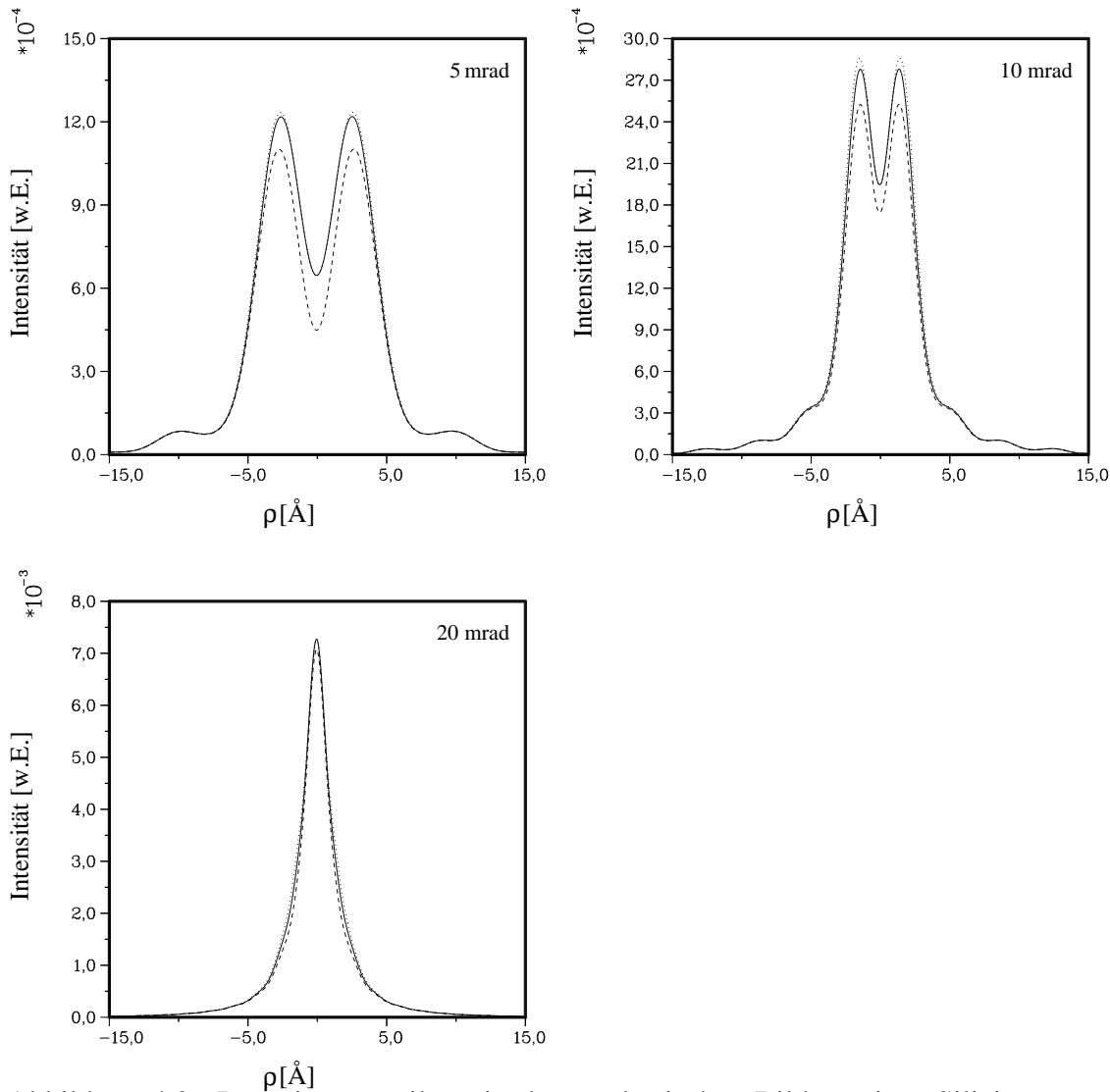


Abbildung 4.2: Intensitätsverteilung in den unelastischen Bildern eines Siliziumatoms gerechnet für ein 120kV-Mikroskop mit idealer Linse,  $\Delta f = 0\text{nm}$  und verschiedene Objektivaperturen. Die Bilder sind für eine unterschiedliche Anzahl von Termen in der Reihenentwicklung (4.47) simuliert:

$|n| = 0, 1$  und  $k = 0$  (- - -),  $|n| = 0, 1, 2$  und  $k = 0, 1$  (—), sowie  $|n| = 0, 1, 2$  und  $k = 0, 1, 2$  ( $\cdots$ ).

Abbildung 6.3: Reproduktion der Seite 54 aus [28]. Die Reihenentwicklung (4.47), auf die die obige Legende hier Bezug nimmt, ist eine „gewaltsame“ Zerlegung analog derjenigen für die thermisch diffuse Streuung in Kapitel 6.6.2 auf Seite 82ff. Der Parameter  $k$  in der obigen Legende entspricht dabei unserem Parameter  $m$ .



$10.75/4.5 = 2.4$  überein. Hingegen wird hier die zusätzliche Intensität, die die zweite Entwicklungsordnung zur Gesamtintensität beiträgt deutlich überschätzt:  $12.2/10.75 = 1.13$  zu  $5.01/4.81 = 1.04$ .<sup>5</sup> Die höheren Entwicklungsordnungen tragen hingegen jetzt mehr bei, als bei [28]. Allerdings macht ein Vergleich dieser keinen rechten Sinn, da die Angaben dazu bei [28] inkonsistent sind. Die Entwicklungsordnung ist ja durch Beiträge mit dem gleichen Wert der Potenz  $|n| + 2m$  bestimmt.

Bei einer Objektivapertur von  $\Theta_0 = 10$  mrad stimmt der Verlauf der Intensitätskurven höherer Ordnung nicht mal mehr qualitativ überein. Die zentrale Einsattelung wird hier in viel stärkerem Maße aufgefüllt als bei [28]. Die hier weggelassenen Intensitätskurven noch höherer Ordnung unterscheiden sich von derjenigen vierter Ordnung nur noch minimal in der Umgebung der Einsattelung. Das Doppelmaximum steigt dabei noch etwas an, aber der Abstand dieser beiden Maxima voneinander verringert sich nicht mehr merklich, jedenfalls nicht bis zur maximal überprüften Entwicklungsordnung  $o = 10$ .

Auf die Wiedergabe entsprechender Berechnungen im Falle der thermisch diffusen Streuung verzichte ich hier. Das Ergebnis ist hier für kleine Werte der Objektivapertur ( $\lesssim 25$  mrad) günstiger. Die Dipolnäherung stellt für Bilder eine gute Näherung dar. Die höheren Näherungen füllen auch hier wieder das Minimum zwischen den Ringen auf. Für gute Beugungsbilder, insbesondere für CBED-Simulationen, muß man eigentlich bis zur dritten Entwicklungsordnung gehen. In der Tabelle in Abbildung 6.4 sind die Intensitäten als Funktion der Entwicklungsordnungen bis vierter bzw. fünfter Ordnung für eine realistische CBED-Simulation eingetragen.

Vergleicht man übrigens diese Kurven mit den entsprechenden Kurven in [68], so sieht man, daß hier die nullte Ordnung oder der „Monopol“ die Rolle des longitudinalen Terms  $A_{||}$  in [68] spielt. Bei 120 keV beträgt der Wert des „charakteristischen“ Streuwinkels für Silizium  $\Theta_E = 0.387$  mrad. Dem entspricht bei einer Objektivapertur von  $\Theta_0 = 5$  mrad ein Verhältnis  $\Theta_E/\Theta_0 = 0.077$ , was einigermaßen zu dem Wert der Kurve (c) der Figur 8 auf Seite 197 von 0.1 paßt. Das ist eigentlich recht merkwürdig, müßte doch in einer Rechnung wie der unsrigen, die nur die auf die lateralen Komponenten abstellt, der Wert der Bildintensität im Zentrum 0 werden bzw. sein. Der Kurvenverlauf für größere Werte der Objektivapertur stimmt denn auch nur mehr qualitativ mit den Ergebnissen in [68] überein. Denn z. B. für eine Objektivapertur von  $\Theta_0 = 20$  bzw. 25 mrad ist  $\Theta_E/\Theta_0 = 0.019$  bzw. 0.015, was bei [68] zu einem immer kleiner werdenden Anteil von  $A_{||}$  und einem immer näher um das zentrale Minimum gelegenen, immer höher werdenden Ring des lateralen  $A_{\perp}$  Intensitätsterms führt, während sich hier (für Silizium) ab einem Wert für  $\Theta_0$  von etwa 15 mrad der Dipolterm  $n = 1$  und die höheren Entwicklungsordnungen immer mehr an den zentralen Monopol bzw. den Ort des Atoms anschmiegen. Das Atom wird daher in einem immer schmaleren und immer intensiverem Bildfleck sichtbar.<sup>6</sup> Wenn man sich das Atom als undurchdringliche Kreisscheibe vorstellt, dann entsteht jener helle Ring um ein dunkleres Zentrum bei  $\Theta = 5$  mrad, was bei 120 keV ja einer lateralen Ortsauflösung von etwa  $0.94 \text{ \AA}$  entspricht, einfach dadurch, daß man hier den zentralen Teil des Atoms fast ganz abdeckt, sodaß (inkohärente!) Streustrahlung nur von einem äußeren Ring von Schichten des Atoms ins Bild gelangen. Da das Atom aber keine undurchdringliche Kreisscheibe ist, sondern eine Kugel mit variablem Brechungs- und Beugungsvermögen, sind die daher rührenden, einzelnen Bildpunkte nach Maßgabe dieses Streuvermögens lateral verschmiert

<sup>5</sup>Das Verhältnis der Gesamtintensitäten ist  $7.01/6.29 = 1.11$ .

<sup>6</sup>Eigentlich wird in [68] ja auch das Verhalten der lateralen und parallelen Terme als Funktion des Energieverlustes bei konstanter Wahl der Objektivblende diskutiert, während wir eben für konstantes  $\Theta_E$  die erhaltenen Bilder als Funktion der Objektivblende diskutiert haben. Diese beiden Dinge sind nicht derart reziprok zueinander, wie man es auf den ersten Blick anhand der von dem Parameterverhältnis  $\Theta_E/\Theta_0$  bestimmten Auftragung in [68] erwartet, sondern gewissermaßen anti-reziprok dazu.

und überlappen sich. Je größer man die Blende wählt, desto weniger wird das Atom abgedeckt, und die laterale Ausdehnung der Ringwälle wird schmaler. Gleichzeitig laufen sie aber aufeinander zu, und der zentrale Monopol gewinnt an Intensität, sodaß relativ zu diesem die Ringbeiträge immer mehr abnehmen. Irgendwann kann man diese Ringwälle und den zentralen Monopol nicht mehr separat auflösen – analog zu drei sich überlappenden Spektrallinien von variabler Intensität und variablem Frequenzabstand – was hier zwischen 10 und 15 mrad eintritt.<sup>7</sup> Übrigens sieht man anhand der Abbildungen auch, daß selbst bei großen Streuwinkeln ein recht hoher Intensitätsanteil in den Füßen bzw. in dem Sockel um das zentrale Intensitätsmaxima steckt.

In dem folgendem Beispiel (Abbildung 6.5) wird eine vollständige Rechnung für den Fall der konvergenten Elektronen-Beugung (CBED) an einem Siliziumkristall zur Überprüfung der Konvergenz der Reihenentwicklung herangezogen.

Der gewählte Siliziumkristall wird in Richtung seiner Raumdiagonale durchstrahlt. Das ist die  $[111]$ -Richtung. Der Bildberechnung liegt eine Superzelle aus  $18 \times 10$ -Elementarzellen zugrunde, die auf einer  $1024 \times 1024$ -er Matrix bei einer Bandbegrenzung von  $B = 2/3$  diskretisiert wurde. Diese Superzelle hat die Abmessungen  $|\mathbf{a}| = 68.985 \text{ \AA}$ ,  $|\mathbf{b}| = 66.381 \text{ \AA}$  und  $c_z = 9.3877 \text{ \AA}$ . Die  $\mathbf{a}$ ,  $\mathbf{b}$ -Vektoren wurden hier senkrecht aufeinander stehend gewählt, sodaß 12 Atome in der Elementarzelle liegen. Jeweils 4 Atome liegen dabei auf den 3 verschiedenen Ebenen der Elementarzelle in einem Abstand  $c_z/3$  voneinander entfernt. Die Dicke des gewählten Siliziumkristalls betrug 48.8 nm. Das entspricht 52 Elementarzellen in  $z$ -Richtung, was insgesamt 156 Scheibchen ergibt. Für die inelastische Berechnung wurde eine Elementarzelle (= 3 Scheibchen) zu einem „dicken inelastischen“ Scheibchen zusammengefaßt. Das Simulationsergebnis für verschiedene Ordnungen der Reihenentwicklung ist in der Abbildung 6.5 dargestellt. Man sieht deutlich, daß eine Berücksichtigung des Temperaturfaktors mit zusätzlicher oder ohne zusätzliche Berücksichtigung der Absorption, die Übereinstimmung mit dem Experiment deutlich verbessern wird, da der Temperaturfaktor (mit  $\sigma = 7.746 \text{ pm} \Leftrightarrow u = 5.477 \text{ pm}$ ) die abnorm hohen Intensitäten der elastischen Streuung bei den Lauezononen höherer Ordnung (HOLZ) drastisch reduziert. Die inkohärente, thermisch diffuse und inelastische Streuung füllt insbesondere den Untergrund zwischen den CBED-Scheibchen aus.

Die Tabelle in Abbildung 6.4 enthält die Rohwerte für die Intensität, die die einzelnen Teilbilder in Abhängigkeit von der Entwicklungsordnung zur Gesamtintensität im ungefilterten CBED-Beugungsbild beitragen. Man beachte, daß darin die Intensitätswerte für das thermisch diffuse ( $\text{tds}$ ) und das inelastische ( $\text{in}$ ) Beugungsbild noch durch den Wert des Parameters für die Anzahl der statistischen Phasen-Durchläufe ( $\text{stat}$ ) zu dividieren sind. Was letzteres genau bedeutet, erklärt das folgende Kapitel, welches lautet:

## 6.2 Die Methode der statistischen Phasen

Bei der Methode der statistischen Phasen wird man der schnell viel zu groß werdenden

---

<sup>7</sup> Allerdings hat sich spätestens ab der Arbeit [68] eine etwas andere und weniger anschauliche bzw. intuitiv verständliche Interpretation durchgesetzt. Man sagt, diese Ringwälle seien ein Effekt des delokalisierten Streuvermögens der inelastisch gestreuten Atome. Allerdings müßte man für eine zu diesem Ende führende Interpretation, die Sache bei festem Blendenradius als Funktion des Energieverlustes „aufziehen“, wie das in [68] ja auch tatsächlich gemacht wird. Hier aber diskutieren wir den Nettoeffekt aller mit beliebigem, aber wegen unserer auf der Hochenergie-Näherung beruhenden Darstellung nicht zu großem, Energieverlust gestreuten Atome. Diesen kleinen Unterschied der Vorgänge sollte man daher in der Interpretation dieser Dinge wenigstens andeuten. Das Verhalten auf der Energieachse ist zwar in gewisser Weise ähnlich zu dem auf der Blenden bzw. Ortsachse, aber mindestens reziprok dazu.

```

abs:  I= 0.374437

tds: stat= 5
      n      I      dI
      1  0.462792
      2  0.617150  .154358
      3  0.685661  .068511
      4  0.728834  .043173
      5  0.747306  .018472
      6

in : stat= 10
      n      I      dI
      1  3.315037
      2  3.700938  .385901
      3  3.817833  .116895
      4  3.844750  .026917
      5

un :
      n      I      CPU-Zeit (AlphaStation 500/500, 21164a-500, L3= 8MB)
1,1  0.7984991  4d15h43m
2,2  0.8679608  8d21h43m
3,3  0.8933525  14d12h36m
4,4  0.9046788  24d05h50m
5,4  0.9083732  25d18h15m

```

Abbildung 6.4: Tabelle mit Rohdaten der Intensität in den CBED-Beugungsbildern (siehe Abbildung 6.5). *abs*= *mean*+*abs* := elastische Streuung mit Berücksichtigung des Temperaturfaktors (*mean*) und der Absorption (thermisch diffus + inelastisch), *tds*= thermisch diffuses Teilbild, *in*= inelastisches Teilbild, *un*= ungefiltertes Summenbild, *stat*= Anzahl der verwendeten statistischen Phasen *S* (siehe folgendes Kapitel). *mean*= elastische Rechnung mit Temperaturfaktor aber ohne Absorption. Die angegebenen Rechenzeiten gelten unter der Voraussetzung, daß bei der thermisch diffusen und inelastischen Bildberechnung je 3 Scheibchen zu einem dicken, inelastischen Scheibchen zusammengefaßt werden (= Faktor 3 an Rechenzeiterparnis).

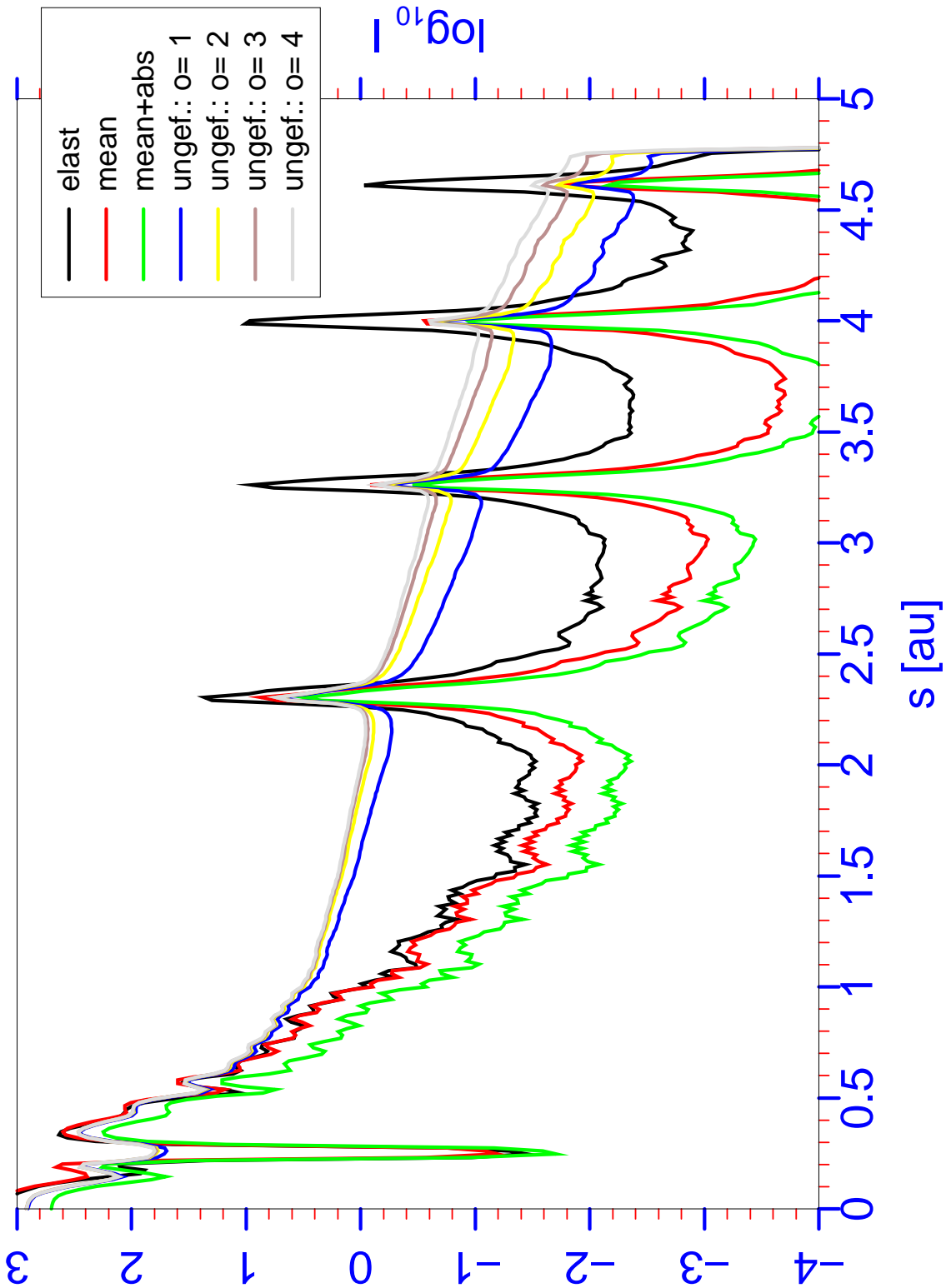


Abbildung 6.5: Azimutal gemittelte CBED-Beugungsbilder (Bilder in Kapitel 7) für Silizium bei 100 keV und  $C_S = 3.3$  mm, einer Beleuchtungsapertur von 8 mrad und einem Defokus von  $\delta f = 1353.6$  Å. Sonstige Parameter:  $c = 48.8$  nm (156 Scheibchen),  $1024 \times 1024$ -er Matrix,  $B = 2/3$ . Man vergleiche [67], Seite 153. Die Abzisse  $s$  ist proportional zum lateralen Impulsübertrag.

Anzahl der Atome im Objekt durch eine rechnerische Nachbildung der Natur Herr. Man ersetzt hier den Anteil (4.65) der inelastischen Transmissionsfunktion, durch den Ausdruck

$$T_k(\{\alpha^s\}, z_j; \boldsymbol{\rho}) = \hat{\mathcal{F}}^{-1} \left\{ \sum_l^{A_j} T_k^l(z_j; \mathbf{s}) e^{i\boldsymbol{\rho}_l \mathbf{s}} \cdot e^{i\alpha_l^s} \right\} \quad (6.3)$$

mit einem Satz  $\{\alpha^s\}$  von Parametern. Das heißt, daß man hier im inelastischen Anteil der Transmissionsfunktion für das  $j$ -te Scheibchen die Beiträge aller  $A_j$  Atome dieses Scheibchens kohärent aufaddiert. Allerdings fügt man dabei jedem Atom einen eigenen zusätzlichen Phasenfaktor  $e^{i\alpha_l^s}$  bei. Diesen Ausdruck setzt man dann in (4.64) anstatt der eigentlichen Funktion (4.65) ein und streicht in (4.64) ferner noch die Summe  $l$  über alle Atome, sodaß nur noch die Summe  $k$  über die Entwicklungsterme verbleibt. Mit der so modifizierten inelastischen Transmissionsfunktion

$$T_k^{\text{in}}(\{\alpha^s\}, z_j; \boldsymbol{\rho}) = T_k(\{\alpha^s\}, z_j; \boldsymbol{\rho}) \cdot T^{\text{abs}}(z_j; \boldsymbol{\rho}) \quad (6.4)$$

rechnet man dann den Streubeitrag für diese Partialwelle in der Bild- und Beugungsbildebene aus. Bei der anschließenden Bildung des Betragsquadrates entstehen auf diese Weise dann unerwünschte Interferenzterme. Verfügt man nun aber über den freien Parametersatz der  $\{\alpha^s\}$  derart, daß, etwa bei einer Wahl gemäß einer gleichverteilten Zufallsverteilung, diese unerwünschten Interferenzterme durch Mittelung über einen hinreichend großen Satz  $S$  an Parametern  $\{\alpha^s\}$

$$I(S, z_B; \boldsymbol{\rho}) = \frac{1}{S} \sum_{s=1}^S \sum_k |\psi(\{\alpha^s\}, z_B; \boldsymbol{\rho})|^2 \quad (6.5)$$

verschwinden, so erzwingt diese Mittelung die notwendige Inkohärenz der einzelnen Streubeiträge im Nachhinein wieder. Bei dieser Form der Berechnung ist also gewährleistet, daß gilt:

$$\lim_{S \rightarrow \infty} I(S, z_B; \boldsymbol{\rho}) = I(z_B; \boldsymbol{\rho}). \quad (6.6)$$

Es zeigt sich, daß sich auf diese Weise recht schnell brauchbare Simulationsergebnisse einstellen. Bei amorphen Objekten, Kristallen mit sehr vielen Atomen in der Einheitszelle und wenn das Objekt zwar ein Kristall mit hinreichend wenigen Atomen in der Einheitszelle ist, die Beleuchtung des Objektes nicht durch eine ebene Welle erfolgt, sodaß man also die Translationssymmetrie des Kristalls nicht nutzen kann, ist dies die Methode der Wahl.

## 6.3 Kristall-Multislice Methode für inelastische Streuung

Die Kristall-Multislice Methode für die inelastische Streuung kommt als unabhängige Kontrollmethode immer dann in Frage, wenn die Beleuchtung des Objektes mit einer ebenen Welle erfolgt, und das Objekt ein Kristall mit wenigen Atomen in der Einheitszelle ist. Sie nutzt die Translationssymmetrie des Kristalls und die Tatsache, daß die inelastischen Streubeiträge der einzelnen Atome vollständig inkohärent zueinander sind, um nur den Streubeitrag jedes Atoms einer Einheitszelle gemäß (4.64) zu berechnen, um dann anschließend das so berechnete Bild der Einheitszelle zur Superzelle zu expandieren. Dies ist schematisch in der folgenden Figur 6.6 für den Fall einer  $2 \times 2$ -Superzelle mit 2 Atomen in der Einheitszelle dargestellt.

Das Beugungsbild entsteht dabei einfach dadurch, daß man die Beugungsbilder der Atome der Einheitszelle mit dem Replikationsfaktor der Einheitszelle, in dem obigen Beispiel also

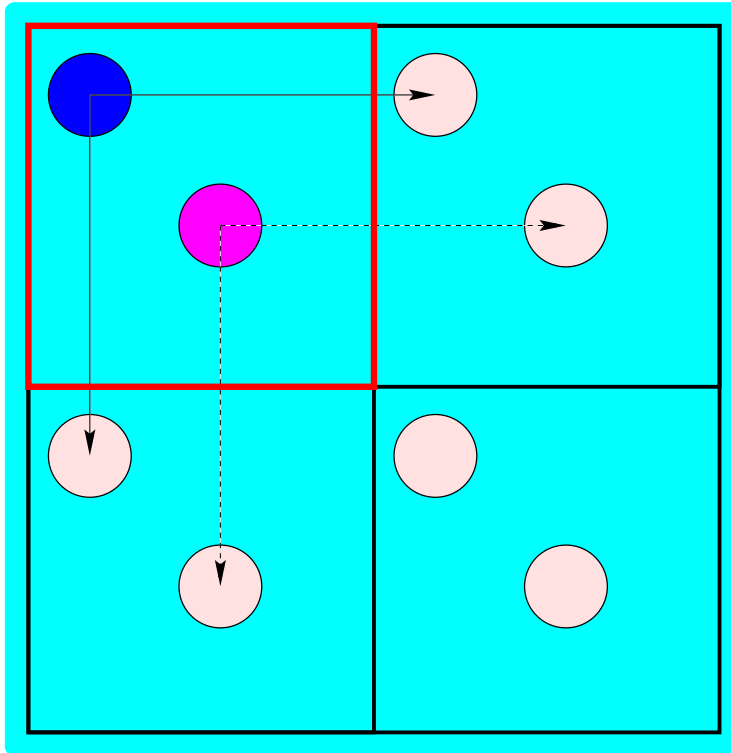


Abbildung 6.6: Schema der Kristall-Multislice (KMS) Methode für die inelastische Streuung: Es wird nur das Bild der Einheitszelle berechnet. Die Bilder der Atome werden dann in die Superzelle kopiert, bzw. das Bild der Einheitszelle wird zum Bild der Superzelle expandiert.

mit 4, multipliziert. Mit dieser Methode kann man die Methode der statistischen Phasen auf ihre Wirksamkeit hin genau überprüfen, da man dadurch ein definiertes Sollergebnis bekommt.

## 6.4 Beispiele

Zum Vergleich beider Methoden wird hier exemplarisch wieder ein Siliziumkristall gewählt. Diesmal wird die Rechnung auf einer  $512 \times 512$ -Matrix für eine  $7 \times 4$ -Superzelle durchgeführt. Die Bandbegrenzung ist auf  $B = 2/3$  gesetzt worden, und die Einstrahlrichtung ist wieder die  $[111]$ -Richtung. Die Dicke des Objektes betrug nun jedoch 40.4 nm, was 43 Elementarzellen in z-Richtung oder 129 Scheibchen entspricht. Ferner war die kinetische Energie des Elektrons jetzt 120 keV und die Objektivaperturblende wurde auf  $\Theta_0 = 25$  mrad gesetzt. Ansonsten wurden ideale Abbildungsbedingungen verwendet. Weiterhin wurden bei der inelastischen Rechnung wieder die 3-Scheibchen der Elementarzelle zu einem dicken, inelastischen Scheibchen zusammengefaßt.

Anhand der sich aus der Rechnung ergebenden Teilbilder für die thermisch diffus gestreuten Elektronen (Abbildung 6.7 und 6.8) sieht man, daß sich zwar bei der Methode der statistischen Phasen relativ schnell ein zu dem mit dem Kristall-Multislice Verfahren berechneten Sollbild ähnliches Resultat einstellt, daß es aber andererseits sehr vieler Sätze von statistischen Phasen bedarf, um die Intensitätsvariationen im Bild und insbesondere den Grauschleier, der auf dem Bild liegt, wegzumitteln. Aus der Abbildung 6.8 geht hervor, daß dies selbst für 160 Sätze statistischer Phasen noch nicht vollständig eingetreten ist.<sup>8</sup>

<sup>8</sup>Wenn man hier etwa dem zur Rechnung verwendeten Pseudo-Zufallszahlen-Generator mißtrauen sollte: Es ist dies der Generator ran2 aus [95]. Er wurde so umgeschrieben, daß er das Nicht-Standard Fortran

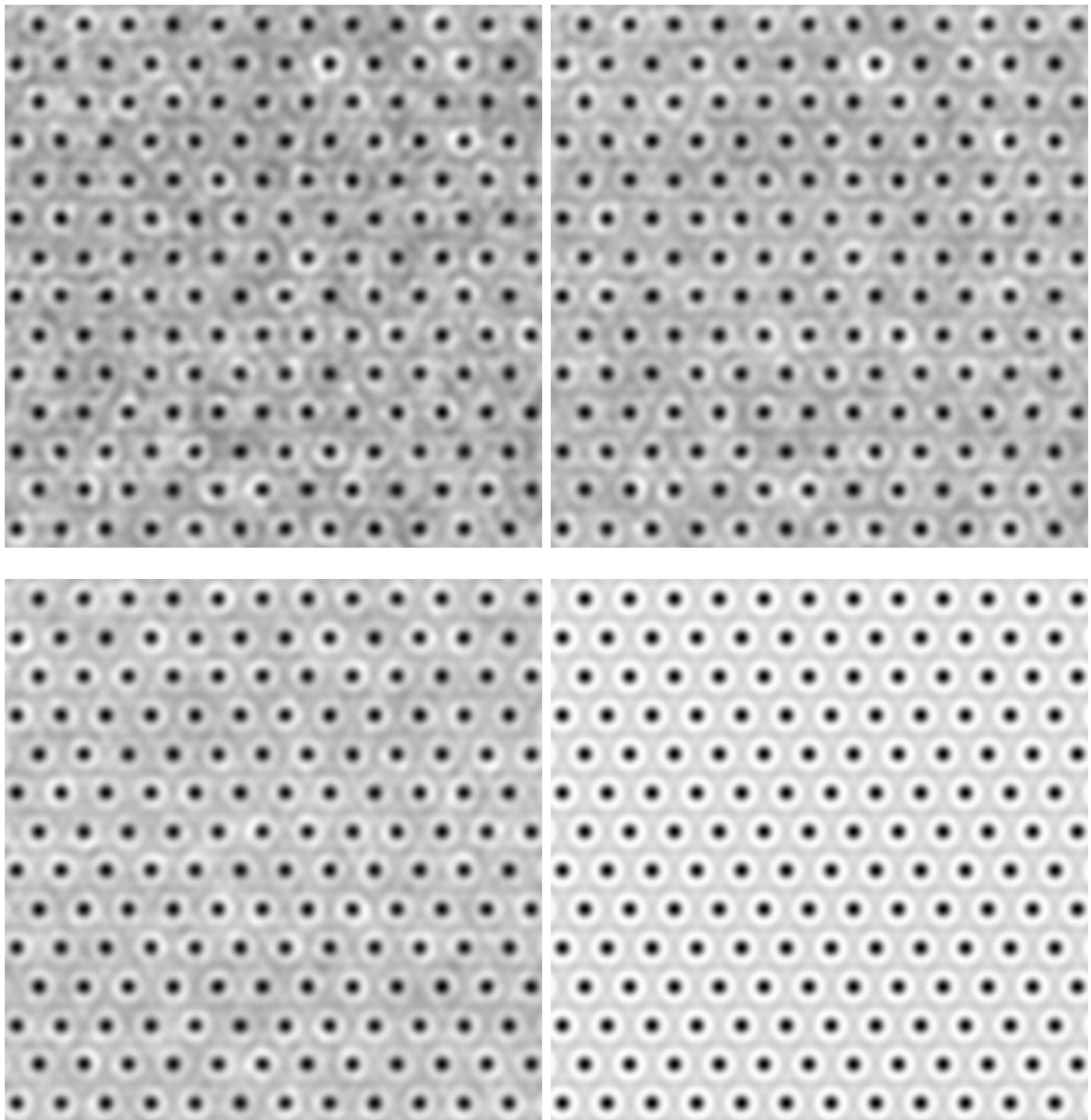


Abbildung 6.7: Thermisch diffuse Bilder berechnet mit zunehmender Anzahl statistischer Phasensätze  $S$ : Oben links:  $S = 5$ . Oben rechts:  $S = 10$ . Unten links:  $S = 20$ . Unten rechts: Sollergebnis gemäß der Kristall-Multislice Methode für inelastische Streuung. Die mit der Methode der statistischen Phasen berechneten Bilder sind selbst mit nur 5 Sätzen statistischer Phasen qualitativ in Ordnung, aber es treten noch ziemlich große Intensitätsvariationen und ein Grauschleier als Untergrund auf, der nur langsam verschwindet.

Mit den hier dargestellten Bildern kann man prophezeien, daß dies auch für  $S = 320$  noch nicht eintreten wird, sondern daß man dafür noch mehr Phasensätze brauchen wird. Wir haben aber in der  $7 \times 4$ -Superzelle von Si-[111] lediglich 336 Atome, sodaß wir in 336 Durchläufen auch perfekte Bilder und Beugungsbilder berechnen könnten, aber nur in genau 336 Durchläufen. Der springende Punkt bei der Methode der statistischen Phasen ist nun, daß man ein ungefähres Ergebnis dieser langwierigen Rechnung schon mit in im Ver-

---

aber Standard-Unix Fortran Zufallszahlengenerator Gespann `srand/rand` ersetzen kann. Dies ist/war z. B. deshalb nötig, weil der GNU `g77` Fortran Compiler für Linux keine Bibliotheksfunktion dafür hatte und es natürlich immer zu empfehlen ist, daß man einem Programm eine Referenzimplementierung von Nicht-Standardfunktionen beilegt.

gleich dazu wesentlich weniger Durchläufen bekommt.

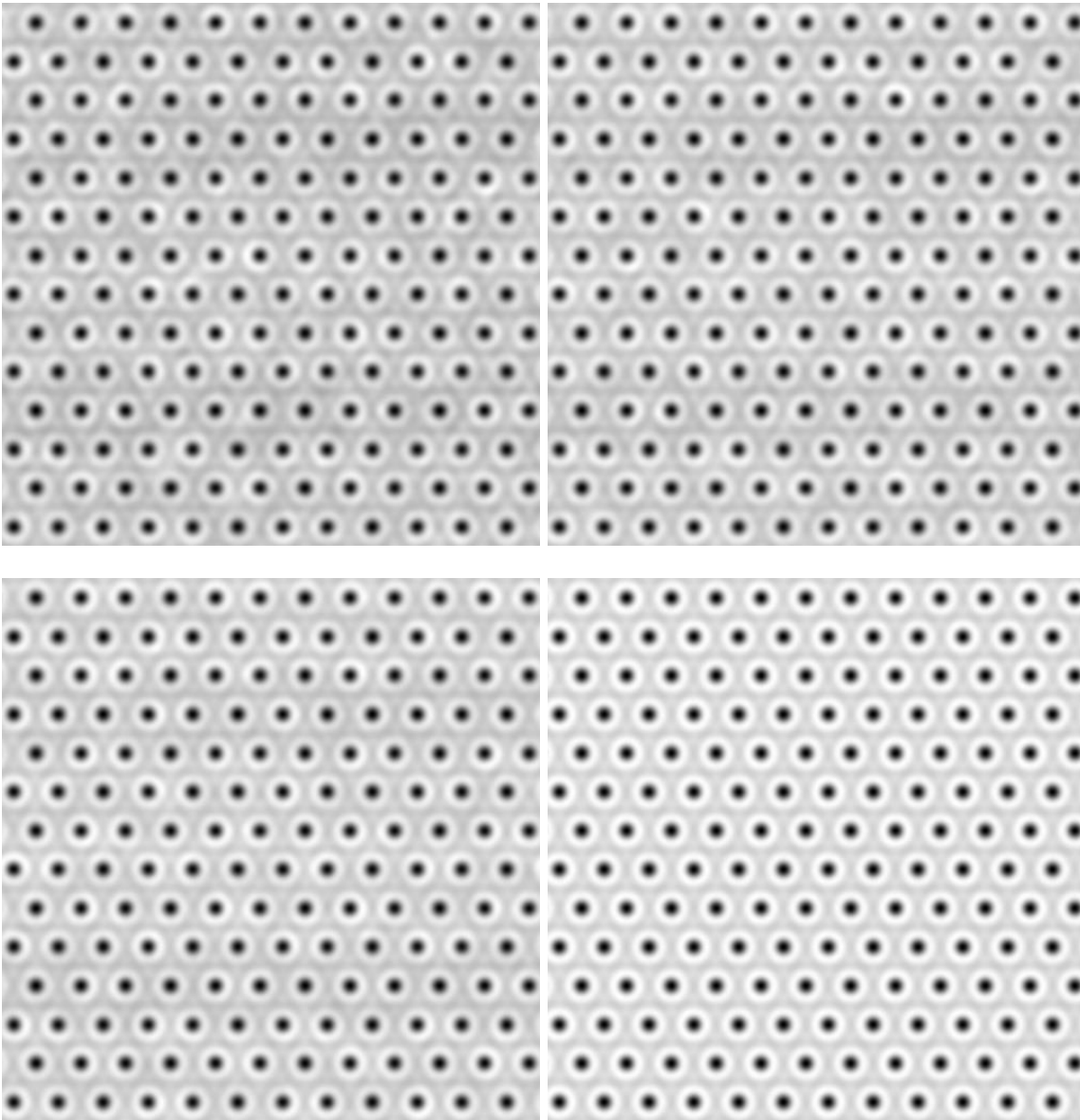


Abbildung 6.8: Thermisch diffuse Bilder berechnet mit zunehmender Anzahl statistischer Phasensätze  $S$ : Oben links:  $S = 40$ . Oben rechts:  $S = 80$ . Unten links:  $S = 160$ . Unten rechts: Sollergebnis gemäß der Kristall-Multislice Methode für inelastische Streuung. Selbst bei  $S = 160$  treten noch deutlich sichtbare Abweichungen vom Sollergebnis auf, insbesondere tritt ein leichter Grauschleier als Untergrund auf.

Die Struktur in den Beugungsbildern der Abbildungen 6.9 und 6.10 rührt allein von der elastischen Vielfachstreuung der inelastischen Partialwellen bei der Propagation durch den Kristall her. Ohne diese elastischen Vielfachstreuung würde man einen homogenen, strukturlosen Untergrund sehen, der zu hohen Raumfrequenzen hin schwächer wird.<sup>9</sup> Insbesondere gilt das auch für die verbreiterten, „inelastischen“ Bragg-Reflexe in dem inelastischen Teilbild in Abbildung 6.9 links unten. Ferner sieht man an diesem Teilbild, daß auch die inelastisch gestreuten Elektronen einen sternförmigen Untergrund ausbilden.

<sup>9</sup>Man vergleiche dazu die diesbezügliche Diskussion am Ende von Kapitel 4.5 zu Formel (4.68) auf Seite 53.



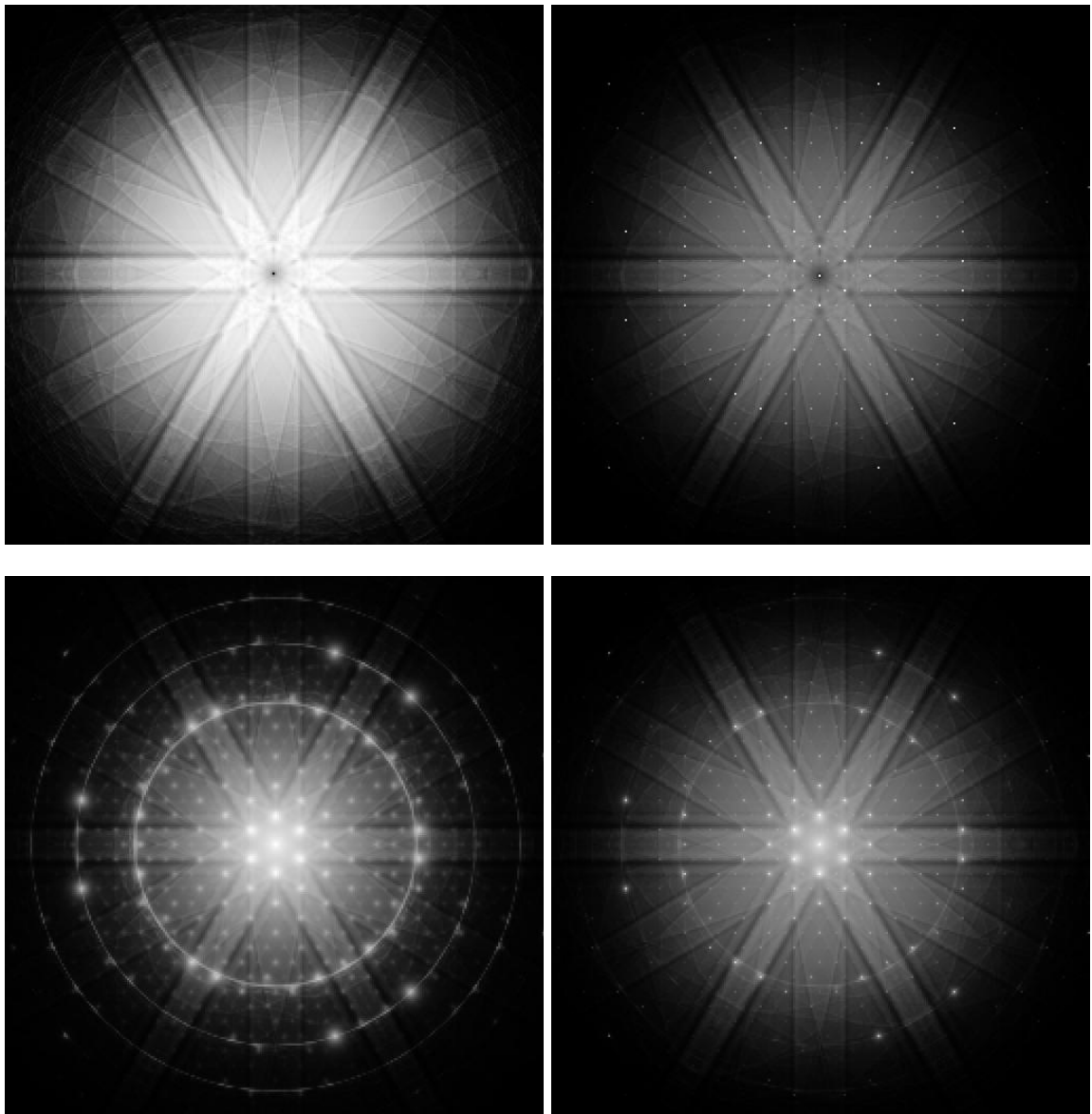


Abbildung 6.9: Beugungsbilder berechnet mit dem Kristall-Multisllice Verfahren (Vgl. Text): Oben links: Thermisch diffuses Beugungsbild. Oben rechts: elastisch gefiltertes Beugungsbild. Unten links: inelastisches Beugungsbild. Unten rechts: ungefiltertes Beugungsbild. Gezeigt ist jeweils der zentrale Ausschnitt um den Nullstrahl von  $256 \times 256$ -Pixeln aus dem  $512 \times 512$ -er Beugungsbild.

Es fällt beim Betrachten dieser Beugungsbildern weiterhin auf, daß sie anscheinend schon viel früher als die Bilder recht gut aussehen, wenn man von ihrem Rauschanteil absieht. Insbesondere ist das thermisch diffuse Beugungsbild zu  $S = 5$  Sätzen statistischer Phasen im Vergleich zu dem Bild mit  $S = 5$  Phasensätzen verblüffend gut. Der Grund dafür ist natürlich der, daß die Objektivblende in der Beugungsbildebene einen kleinen Ausschnitt um den Nullstrahl aus der (Partial-)Wellenfunktion ausschneidet. Die darin vorkommenden Schwankungen und Unsymmetrien treten dann im Bild voll zu Tage.

## 6.5 Fazit

Der Vergleich der Methode der statistischen Phasen mit der Kristall-Multisllice Methode bei

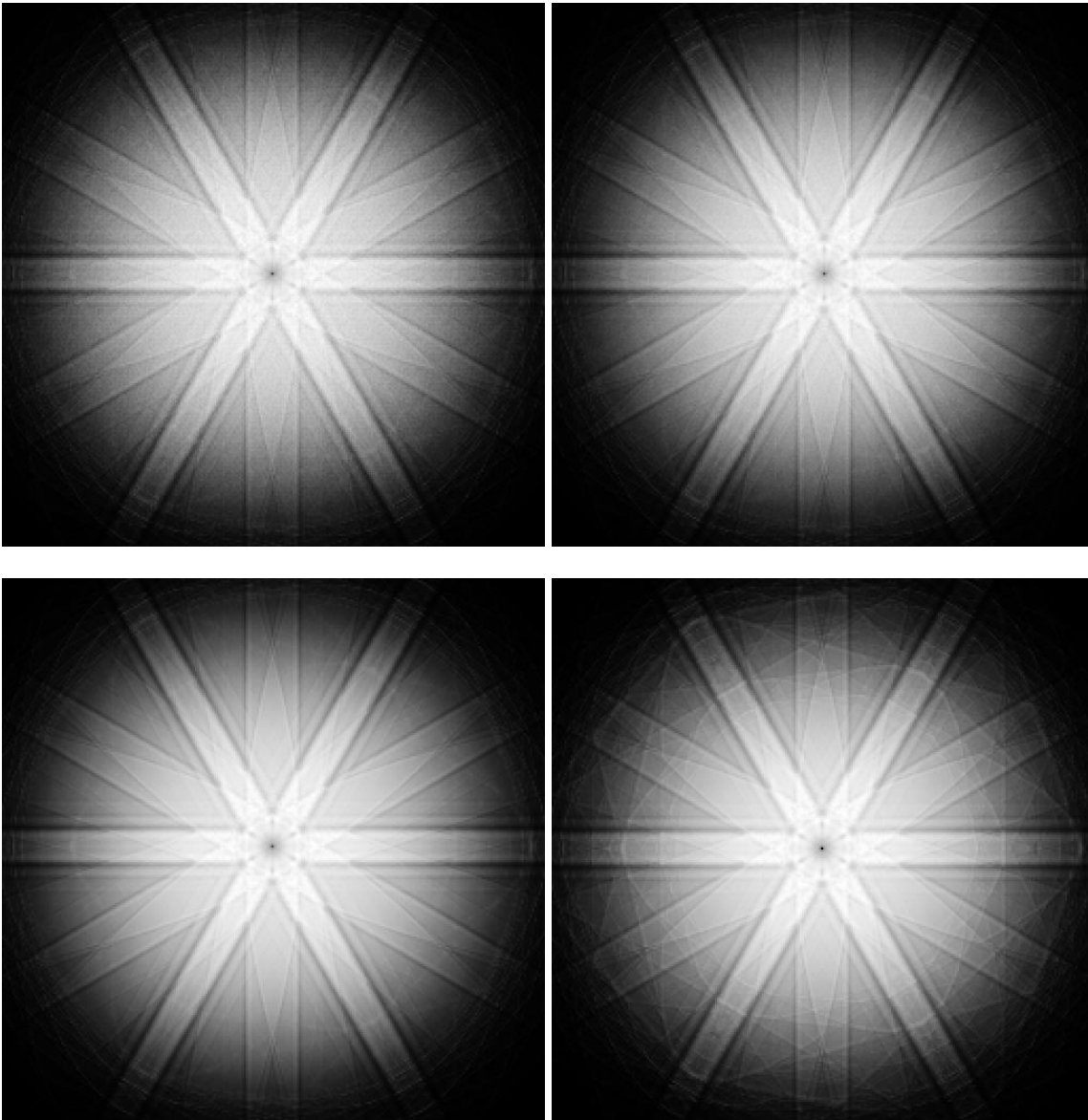


Abbildung 6.10: Vergleich der gemäß der Methode der statistischen Phasen mit  $S = 5, 10$  (oben) und 160 (unten, links) berechneten thermisch diffusen Beugungsbilder mit dem perfekten Beugungsbild des Kristall-Multislice Verfahrens. Während bei letzterem die Kikuchi-Linien deutlich hervortreten, deuten sie sich bei den anderen nur im Außenbereich schwach an. Im wesentlichen nimmt bei den mit der Methode der statistischen Phasen berechneten Bildern nur das Rauschen ab. Gezeigt ist jeweils der zentrale Ausschnitt um den Nullstrahl von  $256 \times 256$ -Pixeln aus dem  $512 \times 512$ -er Beugungsbild.

der thermisch diffusen Streuung zeigt, daß man wirklich gute Bilder bei der Methode der statistischen Phasen nur bekommt, wenn man die Anzahl der Phasensätze größer als die Anzahl der Atome in der Superzelle wählt. Das war bei einer solchen „Monte-Carlo“-Methode ja auch nicht wirklich anders zu erwarten. Daß das Verfahren trotzdem funktioniert, liegt daran, daß die Methode der statistischen Phasen schon dann ganz brauchbare Ergebnisse zeitigt, wenn noch  $S \ll A$  ist, worin hier  $A$  die Anzahl der Atome der Superzelle bedeutet. Zum Beispiel reichen im allgemeinen etwa 5 Sätze von statischen Phasen für die thermisch diffuse Streuung und etwa 10 Sätze von statischen Phasen für die inelastische Streuung aus, um zu ganz brauchbaren Ergebnissen für das ungefilterte bzw. das elastisch gefilter-

te („Zero-Loss“-) Bild zu kommen. Auch die Beugungsbilder sind bei dieser erstaunlich geringen Anzahl von statischen Phasensätzen schon recht ansehnlich. Im Gegensatz dazu liefert die Kristall-Multislice Methode erst nachdem alle  $A_{EZ}$  Atome der Einheitszelle separat abgearbeitet wurden, ein Ergebnis, welches mit dem zu simulierenden Objekt zu tun hat. Dann allerdings gleich ein im Rahmen der sonstigen Näherungen perfektes. Man kann den dazu notwendigen Rechenaufwand zwar noch im Hinblick auf die Praxis, für die Bildsimulation von inelastischen Streuprozessen eine Einheitszelle zu einem dicken inelastischen Scheibchen zusammenzufassen, mittels einer Atomsäulen-Erkennung verbessern, sodaß nur alle nichtäquivalenten Atome der Einheitszelle separat durchgerechnet werden müssen. Im Hinblick auf den beschränkten Anwendungsbereich dieser Methode habe ich aber darauf (vorerst) verzichtet.

## 6.6 Exakte Reihenentwicklungen

*Bisher war ich bestrebt, für jedermann verständlich zu sein, aber von [den folgenden Zeilen] fürchte ich, daß [sie] nur von solchen [werden] gelesen werden können, die sich das, was in den Büchern über die Geometrie enthalten ist, angeeignet haben; denn, da diese mehrere sehr gut bewiesene Wahrheiten enthalten, so schien es mir überflüssig, solche hier zu wiederholen, ich habe es aber darum nicht unterlassen, mich ihrer zu bedienen.*

(René DesCartes, Discours de la Methode, Vorbemerkung zu: La Geometrie, 1637)

### 6.6.1 Exakte Ortsraumdarstellung der TDS-Transmissionsfunktion des Einstein-Modells für Doyle-Turner Streuamplituden

Für die Fourierraumdarstellung der TDS-Transmissionsfunktionen des Einstein-Modells findet man allgemein ein Äquation der Form:

$$T_{n,l}(s) = \frac{2\pi}{k} \cdot f(s) \cdot \frac{\exp\{-u^2 s^2\} (us)^{|n|+2l}}{\sqrt{l!} (l + |n|)!} \cdot e^{in\varphi}. \quad (6.7)$$

Darin bedeutet  $\varphi$  den Phasenwinkel von  $s$ .

Setzt man darin für die elastische Elektronenstreuamplitude  $f(s)$  den analytischen Fit nach Doyle und Turner [30] ein, also im wesentlichen  $f(s) = \exp(-bs^2)$ , dann lautet die inverse Fouriertransformation von (6.7):

$$\begin{aligned} T_{n,l}(\rho) &= \frac{2\pi}{k} \iint \frac{\exp\{-(b+u^2)s^2\} (us)^{|n|+2l}}{\sqrt{l!} (l + |n|)!} \cdot e^{in\varphi - is\rho \cos(\varphi - \vartheta)} \frac{s ds d\varphi}{(2\pi)^2} \\ &= \frac{u^{|n|+2l}}{2\pi k \sqrt{l!} (l + |n|)!} \iint e^{-(b+u^2)s^2} \cdot s^{|n|+2l+1} \cdot e^{in\varphi - is\rho \cos(\varphi - \vartheta)} ds d\varphi. \end{aligned} \quad (6.8)$$

Darin ist  $\vartheta$  der Phasenwinkel von  $\rho$ , und das Integral über  $\varphi$  ergibt

$$\int e^{in\varphi - is\rho \cos(\varphi - \vartheta)} d\varphi = 2\pi e^{in\vartheta} i^{|n|} J_{|n|}(\rho s) \quad (6.9)$$

mit der Besselfunktion  $J$  zu ganzzahligem Index, sodaß mit den Abkürzungen  $c^2 = b + u^2$ ,  $m = |n| + 2l + 2$  verbleibt zu quadrieren:

$$T_{n,l}(\rho) = \frac{e^{in\vartheta} i^{|n|} u^{|n|+2l}}{k \sqrt{l!} (l + |n|)!} \int e^{-c^2 s^2} s^{m-1} J_{|n|}(\rho s) ds. \quad (6.10)$$

Für dieses Integral findet sich in [[3]-11.4.28, [46]-6.631.1] der Ausdruck:

$$\int e^{-c^2 s^2} s^{m-1} J_{|n|}(\rho s) ds = \frac{\Gamma(\frac{|n|+m}{2})}{\Gamma(|n|+1)} \cdot \frac{(\frac{\rho}{2c})^{|n|}}{2c^m} \cdot F\left(\frac{|n|+m}{2}, |n|+1; -(\frac{\rho}{2c})^2\right), \quad (6.11)$$

welcher gilt, sofern nur  $\Re(m + |n|) > 0$  &  $\Re c^2 > 0$  ist. Darin ist hier  $\frac{|n|+m}{2} = |n| + l + 1$ . Ferner läßt sich darin die konfluente hypergeometrische Funktion  $F$  vermöge der Relation

$$F(\alpha, \gamma; z) = e^z F(\gamma - \alpha, \gamma; -z) \quad (6.12)$$

auf die, für die Auswertung bequemere, Form bringen:

$$F(|n| + l + 1, |n| + 1; -(\frac{\rho}{2c})^2) = e^{-(\frac{\rho}{2c})^2} \cdot F(-l, |n| + 1; (\frac{\rho}{2c})^2) \quad (6.13)$$

$$= e^{-(\frac{\rho}{2c})^2} \cdot \frac{l! |n|!}{(|n| + l)!} \cdot L_l^{|n|}((\frac{\rho}{2c})^2) \quad (6.14)$$

mit dem (zugeordneten) Laguerreschen Polynom  $L$  [[46]-8.972.1].

Daher erhalten wir die folgende Äquation für die Ortsraumdarstellung der TDS-Transmissionsfunktion des Einstein-Modells für Doyle-Turner Streuamplituden:

$$T_{n,l}(\rho) = \frac{e^{in\vartheta} i^{|n|}}{2k} \cdot \frac{u^{|n|+2l}}{\sqrt{l! (l + |n|)!}} \cdot \frac{(|n| + l)!}{|n|!} \cdot \frac{(\frac{\rho}{2c})^{|n|}}{c^m} \cdot e^{-(\frac{\rho}{2c})^2} \cdot F(-l, |n| + 1; (\frac{\rho}{2c})^2). \quad (6.15)$$

Werden darin die Abkürzungen  $c^2 = b + u^2$ ,  $m = |n| + 2l + 2$  eingesetzt, so wird diese Äquation damit auf diese gebracht:

$$T_{n,l}(\rho) = \frac{e^{in\vartheta} i^{|n|}}{2k} \frac{u^{|n|+2l}}{\sqrt{l! (l + |n|)!}} \frac{(\frac{\rho}{2})^{|n|} \cdot \exp\left(\frac{-(\frac{\rho}{2})^2}{b+u^2}\right)}{(b + u^2)^{|n|+l+1}} \cdot l! \cdot L_l^{|n|}\left(\frac{(\frac{\rho}{2})^2}{b + u^2}\right). \quad (6.16)$$

Multipliziert man dies mit dem komplex konjugierten Ausdruck an der Stelle  $\rho'$  und summiert über  $l$ , so erhält man

$$\left(\frac{1}{2k}\right)^2 e^{in(\vartheta-\vartheta')} \frac{(xyz)^{\frac{|n|}{2}} e^{-(x+y)}}{(b + u^2)(b' + u^2)} \sum_{l=0}^{\infty} \frac{l!}{(l + |n|)!} L_l^{|n|}(x) L_l^{|n|}(y) z^l, \quad (6.17)$$

worin die Buchstaben  $x, y, z$  die folgenden Abkürzungen bedeuten:

$$x = \frac{(\frac{\rho}{2})^2}{b + u^2} = \left(\frac{\rho}{2c}\right)^2, \quad y = \frac{(\frac{\rho'}{2})^2}{b' + u^2} = \left(\frac{\rho'}{2c'}\right)^2, \quad z = \frac{u^2}{b + u^2} \cdot \frac{u^2}{b' + u^2} = \left(\frac{u^2}{cc'}\right)^2. \quad (6.18)$$

Für jene Summe findet man die Äquation [[46]-8.976.1]

$$\sum_{l=0}^{\infty} \frac{l!}{(l + |n|)!} L_l^{|n|}(x) L_l^{|n|}(y) z^l = \frac{(xyz)^{-\frac{|n|}{2}}}{1 - z} \exp\left(-z \frac{x + y}{1 - z}\right) I_{|n|}\left(2 \frac{\sqrt{xyz}}{1 - z}\right) \quad (6.19)$$

mit der (modifizierten) Besselfunktion  $I_{|n|}$ , welche gilt, sofern nur  $|z| < 1$  ist.

Wenn man nun noch die Relation  $I_{-n} = I_n$  nutzt, die für ganzzahlige  $n$  gilt, so bekommt man für die gesamte Äquation (6.17) die folgende Äquation:

$$\left(\frac{1}{2k}\right)^2 \frac{e^{in(\vartheta-\vartheta')}}{(b + u^2)(b' + u^2)} \frac{1}{1 - z} \exp\left(-\frac{x + y}{1 - z}\right) I_n\left(2 \frac{\sqrt{xyz}}{1 - z}\right). \quad (6.20)$$

Darin ist nun

$$\begin{aligned} \frac{1}{(b + u^2)(b' + u^2)} \frac{1}{1 - z} &= \frac{1}{bb' + (b + b')u^2}, \\ \frac{x + y}{1 - z} &= \frac{b'(\frac{\rho}{2})^2 + b(\frac{\rho'}{2})^2}{bb' + (b + b')u^2} + \left(\frac{u}{2}\right)^2 \frac{\rho^2 + \rho'^2}{bb' + (b + b')u^2}, \\ \frac{\sqrt{xyz}}{1 - z} &= \frac{(\frac{u}{2})^2 \rho \rho'}{bb' + (b + b')u^2}. \end{aligned}$$

Summiert man schließlich noch über alle  $|n|$  mit Hilfe der Summenformel [[3]-9.6.34]

$$\sum_{n=-\infty}^{+\infty} I_n(2\alpha\rho\rho') e^{in(\vartheta-\vartheta')} = e^{2\alpha\rho\rho'}, \quad (6.21)$$

so erhält man, wenn man von dem abziehenden Term zu  $n = 0, l = 0$  absieht,  $\mu_{11}^{\text{TDS}}(\rho, \rho')$  für die Doyle-Turner Streuamplituden:

$$\left(\frac{1}{2k}\right)^2 \frac{1}{bb' + (b+b')u^2} \exp\left(\frac{-b'(\frac{\rho}{2})^2 - b(\frac{\rho'}{2})^2}{bb' + (b+b')u^2}\right) \exp\left(\frac{-(\frac{u}{2})^2(\rho - \rho')^2}{bb' + (b+b')u^2}\right). \quad (6.22)$$

Dabei ist zu beachten, daß in dem Faktor  $u/2$  in der zweiten Exponentialfunktion der Nenner 2 eigentlich zu den Ortskoordinaten  $\rho$  gehört. Man kann demnach also auch für solch eine kompliziert aussehende Funktion eine Zerlegung in eine Summe von Produkten finden, die nur je von den gestrichenen und ungestrichenen Koeffizienten abhängen.

Diesen Ausdruck kann man insofern auch einfacher finden, als man ihn auch durch zwei inverse zweidimensionale Fouriertransformationen aus  $\mu_{11}^{\text{TDS}}(\mathbf{s}, \mathbf{s}')$  gewinnen kann. Denn mit Rücksicht auf die Äquation (4.46) ersieht man, daß für Doyle-Turner Streuamplituden  $\mu_{11}^{\text{TDS}}(\mathbf{s}, \mathbf{s}')$  nur aus Gaussfunktionen besteht, sodaß sich die Fouriertransformationen mittels der Äquation (G.18) bestimmen lassen. Allerdings zeigte es sich, daß sich daraus dann die exakte Produktzerlegung (6.15) nicht so einfach auffindet. Dieser Rechenweg war also gewissermaßen ein wenig zu einfach. Man sah sich vielmehr genötigt, dem wie folgt „etwas nachzuhelfen“.

### 6.6.2 Die alte Faktorzerlegung

Bei der alten Faktorzerlegung des Ausdrucks (6.22) wird zunächst der Term  $bb' + (b+b')u^2$  durch das Produkt  $(b+u^2) \cdot (b'+u^2) = c^2 \cdot c'^2$  ersetzt, sodaß

$$\left[\frac{1}{2k} \frac{1}{c^2} \exp\left(-\left(\frac{\rho}{2c}\right)^2\right)\right] \cdot \exp\left(2\left(\frac{u}{2cc'}\right)^2 \rho\rho'\right) \cdot \left[\frac{1}{2k'} \frac{1}{c'^2} \exp\left(-\left(\frac{\rho'}{2c'}\right)^2\right)\right]$$

entsteht, um dann mit Hilfe der Formel (6.21) und der Potenzreihenentwicklung der modifizierten Besselfunktion

$$I_n(2\alpha\rho\rho') = \sum_{|n|,l} \frac{(\alpha\rho\rho')^{|n|+2l}}{l!(l+|n|)!} \quad (6.23)$$

zu folgendem Faktor zu gelangen:

$$\begin{aligned} T_{n,l}(\rho) &= \frac{e^{in\vartheta}}{2k} \frac{1}{(b+u^2)^{|n|+2l+1}} \frac{\left(\frac{u\rho}{2}\right)^{|n|+2l}}{\sqrt{l!(l+|n|)!}} \cdot \exp\left(\frac{-(\frac{\rho}{2})^2}{b+u^2}\right) \\ &= \frac{e^{in\vartheta}}{2k} \frac{u^{|n|+2l}}{\sqrt{l!(l+|n|)!}} \frac{\left(\frac{\rho}{2}\right)^{|n|} \cdot \exp\left(\frac{-(\frac{\rho}{2})^2}{b+u^2}\right)}{(b+u^2)^{|n|+l+1}} \cdot \left\{\frac{\left(\frac{\rho}{2}\right)^2}{b+u^2}\right\}^l. \end{aligned} \quad (6.24)$$

Abgesehen von einem Phasenfaktor entspricht das der höchsten Potenz in  $\rho$  in der Formel (6.16) des exakten Ausdrucks für diesen Faktor. Denn es gilt ja mit dem Kürzel  $x$  gemäß (6.18):

$$\frac{(n+l)!}{n!} F(-l, n+1; x) = \frac{(n+l)!}{n!} \sum_{k=0}^l \frac{(-l)_k}{(n+1)_k} \frac{x^k}{k!} = l! L_l^n(x). \quad (6.25)$$

Darin ist der Kürze wegen  $(a)_k = a(a+1)\cdots(a+k-1)$  gesetzt. Dies ergibt für die höchsten Potenz in  $\rho$

$$\frac{(n+l)!}{n!} \frac{(-l)_l}{(n+1)_l} \frac{x^l}{l!} = (-1)^l x^l = l! L_l^l(x),$$

während z. B.  $L_1^n(x) = n+1-x$  ist.

Diese etwas gewaltsame Faktorzerlegung weicht also von der exakten Faktorzerlegung mit zunehmender Entwicklungsordnung  $o = |n| + 2l$  immer mehr ab. Wegen des alternierenden Vorzeichens der einzelnen  $x$ -Potenzen in der zugeordneten Laguerrefunktion  $L_l^{|n|}(x)$  sind diese Abweichungen nicht allein auf die Umgebung des Atoms (d. h.  $x = 0$ ) beschränkt. Die „Dipol-Näherung“  $o = 1$  (d. h.  $|n| = 1, l = 0$ ) stimmt allerdings in beiden Fällen überein. Erst bei der Entwicklungsordnung  $o = 2$  weichen beide Faktorzerlegungen voneinander ab.

Vergleicht man die Formel (6.24) mit (6.7), so sieht man, daß die Fouriertransformierte von (6.24) ähnlich der Formel (6.15) aufgebaut ist. Die beiden Faktorzerlegungen stehen also gewissermaßen in einem reziproken Verhältnis zueinander. Und zwar gilt konkret:

$$\rho \mapsto s, \quad \vartheta \mapsto \varphi, \quad c \mapsto \frac{1}{2c}, \quad u^{|n|+2l} \mapsto \frac{1}{c^2} \left( \frac{u}{2c^2} \right)^{|n|+2l},$$

worin wie oben  $c^2 = b + u^2$  bedeutet. Setzt man dies in (6.7) ein, so ergibt das mit  $m = |n| + 2l + 2$  für die relevanten Faktoren:

$$u^{|n|+2l} \cdot \left( \frac{\rho}{2c} \right)^{|n|} c^{-m} \mapsto \frac{1}{c^2} \left( \frac{u}{2c^2} \right)^{|n|+2l} \cdot (cs)^{|n|} (2c)^m = 4 (us)^{|n|} \left( \frac{u}{c} \right)^{2l},$$

sodaß man damit

$$T_{n,l}(s) = \frac{2}{k} \cdot \frac{i^{|n|} e^{in\varphi}}{\sqrt{l! (l+|n|)!}} \frac{(|n|+l)!}{|n|!} \left( \frac{u}{c} \right)^{2l} (us)^{|n|} e^{-(cs)^2} \cdot F(-l, |n|+1; (cs)^2)$$

für die Fourierraumdarstellung der TDS-Transmissionsfunktion findet.

Multipliziert man dies nun mit dem komplex konjugierten Ausdruck an der Stelle  $s'$  und summiert über  $l$ , so erhält man hier analog zu Gleichung (6.17)

$$\left( \frac{1}{2k} \right)^2 e^{in(\varphi-\varphi')} (xyz)^{\frac{|n|}{2}} e^{-(x+y)} \sum_{l=0}^{\infty} \frac{l!}{(l+|n|)!} L_l^{|n|}(x) L_l^{|n|}(y) z^l, \quad (6.26)$$

nur daß hier die Buchstaben  $x, y, z$  jetzt ihre reziproke Bedeutung haben:

$$x = (cs)^2, \quad y = (c's')^2, \quad z = \left( \frac{u^2}{cc'} \right)^2. \quad (6.27)$$

Die Variable  $z$  bleibt dabei also invariant.

Das Ergebnis der ausstehenden Summation über  $l$  kann man aus Formel (6.20) entnehmen:

$$\left( \frac{1}{2k} \right)^2 \frac{e^{in(\varphi-\varphi')}}{1-z} \exp \left( -\frac{x+y}{1-z} \right) I_n \left( 2 \frac{\sqrt{xyz}}{1-z} \right). \quad (6.28)$$

Darin ist nun

$$\begin{aligned} \frac{1}{1-z} &= \frac{(b+u^2)(b'+u^2)}{bb' + (b+b')u^2}, \\ \frac{x+y}{1-z} &= (b+u^2)(b'+u^2) \frac{(b+u^2)s^2 + (b'+u^2)s'^2}{bb' + (b+b')u^2}, \\ \frac{\sqrt{xyz}}{1-z} &= (b+u^2)(b'+u^2) \frac{u^2 ss'}{bb' + (b+b')u^2}. \end{aligned}$$

Schließlich ist noch über alle  $|n|$  mit Hilfe der Summenformel [[3], 9.6.34] zu summieren, was die folgende Äquation ergibt

$$\left(\frac{1}{2k}\right)^2 \frac{1}{1-z} \exp\left(-\frac{bs^2 + b's'^2}{1-z}\right) \exp\left\{-\frac{u^2}{1-z}(\mathbf{s} - \mathbf{s}')^2\right\}.$$

Das weicht von dem Sollwert für diese Äquation um die Faktoren  $1/(1-z)$  ab, die man überall herausstreichen müßte.

Den richtigen Sollwert bekommt man auch aus (6.28), wenn man darin  $1-z$ , nicht aber  $\sqrt{z}$  durch 1 ersetzt, also Größen der Ordnung  $u^4$  oder höher vernachlässigt, was dem Ansatz entspricht. Das heißt allerdings, daß die gewaltsame Faktorzerlegung wegen der symmetrischen Zerlegung in Faktoren schon für Größen proportional zu  $u^2$  von der exakten Zerlegung abweicht, in Übereinstimmung mit der obigen Feststellung.

### 6.6.3 Exakte Ortsraumdarstellung der TDS-Transmissionsfunktion des Einstein-Modells für Kohl-Weickenmeier Streuamplituden

Wenn wir in die Fourierraumdarstellung der TDS-Transmissionsfunktionen des Einstein-Modells (6.7) für die elastische Streuamplitude den analytischen Fit nach Kohl und Weickenmeier, d. h. also im wesentlichen  $f(\mathbf{s}) = (1 - \exp\{-b\mathbf{s}^2\})/s^2$  einsetzen, dann kommt uns für die analytische Berechnung der zugehörigen Ortsraumdarstellung der Umstand sehr zur Hilfe, daß sich dann der in dem Integral (6.10) problematische Term zu  $|n| + 2l = 0$  ja mit dem hinteren, abzuziehenden Term in  $\mu_{11}^{\text{TDS}}$  aufhebt. Die Ortsraumdarstellung der TDS-Transmissionsfunktionen bei Verwendung der Kohl-Weickenmeier Streuamplituden lautet also mithin:

$$T_{n,l}(\rho) = \frac{e^{in\vartheta} i^{|n|} u^{|n|+2l}}{k \sqrt{l! (l+|n|)!}} \int e^{-u^2 s^2} \left\{1 - e^{-bs^2}\right\} s^{m-1} J_{|n|}(\rho s) ds, \quad m = |n| + 2l > 0. \quad (6.29)$$

Das Integral für sich hat i. allg. nur dann einen endlichen Wert, wenn  $u$  größer als 0 ist. Zusammen mit dem Vorfaktor  $u^{|n|+2l}$  ist der Wert des Gesamtausdrucks in der Grenze  $u \rightarrow 0$  allerdings Null, wie es physikalisch auch sein muß. Die Berechnung dieses Integrals erfolgt wie oben angegeben. Im Ergebnis lautet die konfluente hypergeometrische Funktion  $F$  jetzt

$$F(|n| + l, |n| + 1; -z) = e^{-z} F(1 - l, |n| + 1; z),$$

mit

$$z = \frac{(\frac{\rho}{2})^2}{u^2}, \quad \text{bzw.} \quad z = \frac{(\frac{\rho}{2})^2}{b + u^2}.$$

Für  $l = 0$  ergibt sich diesmal also für  $F$  kein Polynom sondern eine transzendente Funktion, der Art, daß das Produkt dieser Funktion mit  $e^{-z}$  für alle  $z$  endlich bleibt. Insbesondere ist die einfachste von ihnen  $l = 0, |n| = 1$  gemäß [[3], 13.6.4]:

$$e^{-z} F(1, 2; z) = e^{-z} \cdot \frac{e^{\frac{z}{2}} \sinh \frac{z}{2}}{\frac{z}{2}} = \frac{1 - e^{-z}}{z}. \quad (6.30)$$

Für die Berechnung der weiteren Terme kann man die Rekursionsbeziehung [[3], 13.4.4]

$$z F(\alpha, \gamma + 1; z) = \gamma \{F(\alpha, \gamma; z) - F(\alpha - 1, \gamma; z)\}$$



verwenden, welche sich in unserem Fall zu

$$F(1, |n| + 1; z) = \frac{|n|}{z} \{F(1, |n|; z) - 1\}, \quad |n| \geq 1 \quad (6.31)$$

vereinfacht und an deren Fußpunkt (6.30) beziehungsweise  $F(\alpha, \alpha; z) = e^z$  steht. Für  $z \rightarrow \infty$  geht der Funktionswert des Gesamtausdrucks gegen 0.

Mit den Abkürzungen

$$a_{n,l} = \frac{e^{in\vartheta} i^{|n|}}{2k \sqrt{l! (l + |n|)!}} \frac{(|n| + l - 1)!}{|n|!}, \quad c_0^2 = u^2, \quad c_1^2 = b + u^2, \quad x_j = \left(\frac{\rho}{2c_j}\right)^2$$

lautet die exakte Ortsraumdarstellung also:

$$T_{n,l}(\boldsymbol{\rho}) = a_{n,l} \sum_j (-1)^j x_j^{\lfloor \frac{n}{2} \rfloor} \left(\frac{u}{c_j}\right)^{|n|+2l} e^{-x_j} F(1-l, |n|+1; x_j). \quad (6.32)$$

Da nun  $(1 - \exp\{-bs^2\})/s^2 = \int_0^b \exp\{-bs^2\} db$  gilt, so kann man (6.32) auch als bestimmtes Integral des Ausdrucks (6.15) über das Intervall  $[u^2, b + u^2]$  berechnen.

Die niedrigsten Entwicklungsterme lauten damit:

$$\begin{aligned} T_{\pm 1,0}(\boldsymbol{\rho}) &= \frac{i^1 e^{\pm i\vartheta}}{2k} \frac{2u}{\rho} \left\{ \exp\left(\frac{-(\frac{\rho}{2})^2}{b+u^2}\right) - \exp\left(\frac{-(\frac{\rho}{2})^2}{u^2}\right) \right\}, \\ T_{0,1}(\boldsymbol{\rho}) &= \frac{1}{2k} \left\{ \exp\left(\frac{-(\frac{\rho}{2})^2}{u^2}\right) - \frac{u^2}{b+u^2} \exp\left(\frac{-(\frac{\rho}{2})^2}{b+u^2}\right) \right\}, \\ T_{\pm 2,0}(\boldsymbol{\rho}) &= \frac{i^2 e^{\pm 2i\vartheta}}{2k\sqrt{2}} \left(\frac{2u}{\rho}\right)^2 \left\{ \exp\left(\frac{-(\frac{\rho}{2})^2}{b+u^2}\right) - \exp\left(\frac{-(\frac{\rho}{2})^2}{u^2}\right) \right\} - \\ &\quad \frac{i^2 e^{\pm 2i\vartheta}}{2k\sqrt{2}} \left\{ \exp\left(\frac{-(\frac{\rho}{2})^2}{u^2}\right) - \frac{u^2}{b+u^2} \exp\left(\frac{-(\frac{\rho}{2})^2}{b+u^2}\right) \right\}. \end{aligned}$$

Wie oben behauptet, gehen sie für  $u \rightarrow 0$  gegen Null.

Die Ausdrücke für die Entwicklungsterme gemäß der alten Faktorzerlegung weichen hiervon wieder ab, sobald man über die Dipolnäherung hinausgeht [28]. Ferner wird dort auch der Aufwand für die Berechnung höherer Entwicklungsterme progressiv größer.

Multipliziert man den Ausdruck (6.32) mit dem komplex konjugierten Ausdruck an der Stelle  $\rho'$ , so erhält man vier Terme von der Form:

$$a_{n,l} a_{n,l}^* (xyz)^{\lfloor \frac{n}{2} \rfloor} e^{-(x+y)} F(1-l, |n|+1; x) F(1-l, |n|+1; y) z^l$$

worin die Buchstaben  $x, y, z$  die folgenden Abkürzungen bedeuten:

$$x = \left(\frac{\rho}{2c}\right)^2, \quad y = \left(\frac{\rho'}{2c'}\right)^2, \quad z = \left(\frac{u}{cc'}\right)^2.$$

Die Summation dieser Reihe stößt nun auf zwei Schwierigkeiten. Zum einen ist in einem der obigen Reihenterme wegen  $c_0 = u = c'_0$  der Parameter  $z = 1$ , und zum anderen ist die konfluente Funktion  $F$  für  $l = 0$  kein Polynom, insbesondere kein Laguerre Polynom.

Derowegen sind wir gezwungen, diese Untersuchung allhier abzubrechen.

## 6.7 Berechnung des TDS-Absorptionspotentials

Für die Doyle-Turner Streuamplituden ergibt sich das TDS-Absorptionspotential durch Fouriertransformation des Ausdrucks, der aus Formel (6.22) für  $\rho = \rho'$  entsteht zu

$$\mu_2^{\text{TDS}}(s) = \frac{1}{k^2} \left[ e^{-u^2 s^2} F(b, b') - F(b + u^2, b' + u^2) \right]. \quad (6.33)$$

Darin ist der Kürze wegen  $F(\alpha, \beta) = \frac{\pi}{\alpha + \beta} \exp \left\{ -\frac{\alpha\beta}{\alpha + \beta} s^2 \right\}$  gesetzt. Man kann dies natürlich auch direkt gemäß der allgemeinen Definition (4.48) mit Hilfe des Integrals (G.17) berechnen.

Da nun  $(1 - \exp\{-bs^2\})/s^2 = \int_0^b \exp\{-bs^2\} db$  gilt, muß man für die Kohl-Weickenmeier Streuamplituden noch ein bestimmtes Integral der Form

$$J(\alpha, \beta, \gamma, \delta; a) = \int_{\alpha}^{\beta} \int_{\gamma}^{\delta} \frac{\exp \left\{ -a \frac{xy}{x+y} \right\}}{x+y} dx dy \quad (6.34)$$

mit  $a \geq 0$  berechnen. A. Weickenmeier hat in seiner Dissertation [127] das Absorptionspotential direkt gemäß der allgemeinen Definition (4.48) berechnet. Da der Integrand dabei im Integrationsbereich Singularitäten aufweist, die geeignet zu berücksichtigen sind, und die daher die ganze Rechnung etwas unübersichtlich machen, so mag es nichts schaden, wenn wir hier eine einfachere Ableitung geben.

Wenn wir in Formel (6.34) den uns am meisten störenden Term wie folgt wegsostituieren

$$u(x) = \frac{xy}{x+y} = \frac{y}{1+y/x}, \quad \frac{dx}{x} = -\frac{x}{u} \frac{du}{u}, \quad \frac{x}{u} = \frac{1}{1-u/y},$$

dann ist der folgende Ausdruck allgemein zu quadrieren

$$\begin{aligned} \iint e^{-au} \frac{u}{y} \frac{1}{u/y - 1} \frac{du}{u} dy &= \int dy e^{-ay} \int \frac{\exp \{ -a(u-y) \}}{u-y} d(u-y) \\ &= \int e^{-ay} \left[ E_1 \left( a \left\{ \frac{xy}{x+y} - y \right\} \right) \right] dy. \end{aligned}$$

Darin ist das erste Exponentialintegral  $E_1$  gemäß [[3], Kap. 5] definiert als:

$$\int_u^{\infty} \frac{e^{-au}}{u} du = E_1(au).$$

Da nun für diese Exponentialintegrale gilt

$$\partial_z E_n(z) = -E_{n-1}(z), \quad \text{mit} \quad E_0(z) = \frac{e^{-z}}{z} \quad \text{und} \quad E_1(-z) = -\text{Ei}(z)$$

integrieren wir partiell und erhalten auf diese Weise die  $\text{Æ}$ quation<sup>10</sup>

$$\begin{aligned} \int e^{-ay} \left[ E_1 \left( a \left\{ \frac{xy}{x+y} - y \right\} \right) \right] dy &= \frac{1}{a} \text{Ei} \left( \frac{ay^2}{x+y} \right) e^{-ay} + \\ &\quad \int e^{-ay} E_0 \left( a \left\{ \frac{xy}{x+y} - y \right\} \right) \frac{2y(x+y) - y^2}{(x+y)^2} dy. \end{aligned}$$

<sup>10</sup>Dabei behalten wir den Umstand in Gedanken, daß das Einsetzen der Integrationsgrenzen bezüglich  $x$  zu zwei ähnlichen Ausdrücken für die Variablen  $y$  in der eckigen Klammer führt.

In dem letzten Integral führt der erste Term auf den Ausdruck

$$I_1 = \int \exp \left\{ -\frac{axy}{x+y} \right\} \frac{x+y}{-ay^2} \frac{2y}{x+y} dy = -\frac{2}{a} \int \frac{\exp \left\{ -\frac{axy}{x+y} \right\}}{y} dy$$

und der zweite auf

$$I_2 = \int \exp \left\{ -\frac{axy}{x+y} \right\} \frac{x+y}{-ay^2} \frac{y^2 dy}{(x+y)^2} = -\frac{1}{a} \int \frac{\exp \left\{ -\frac{axy}{x+y} \right\}}{x+y} dy = -\frac{1}{a} \operatorname{Ei} \left( \frac{ax^2}{x+y} \right) e^{-ax}.$$

Im ersten Integral ( $I_1$ ) substituieren wir

$$u(y) = \frac{xy}{x+y}, \quad y = \frac{ux}{x-u}, \quad dy = \left( \frac{x}{x-u} \right)^2 du,$$

was die folgende Äquation ergibt

$$I_1 = -\frac{2}{a} \int e^{-au} \frac{x-u}{ux} \left( \frac{x}{x-u} \right)^2 du = -\frac{2x}{a} \int \frac{\exp(-au)}{u(x-u)} du.$$

In diesem Integral führt eine Partialbruchzerlegung des Nenners auf das Ergebnis

$$\int \frac{\exp(-au)}{u(x-u)} du = \int e^{-au} \frac{1}{x} \left\{ \frac{1}{u} + \frac{1}{x-u} \right\} du = \frac{1}{x} [-\operatorname{E}_1(au) + e^{-ax} \operatorname{E}_1(a(u-x))].$$

Das ergibt schließlich für das erste Integral die Äquation:

$$I_1 = \frac{2}{a} \left[ \operatorname{E}_1 \left( \frac{axy}{x+y} \right) - e^{-ax} \operatorname{E}_1 \left( a \left\{ \frac{xy}{x+y} - x \right\} \right) \right].$$

Damit haben wir nun folgendes unbestimmte Integral allgemein quadriert:

$$\iint \frac{\exp \left\{ -a \frac{xy}{x+y} \right\}}{x+y} dx dy = \frac{1}{a} \operatorname{Ei} \left( \frac{ax^2}{x+y} \right) e^{-ax} + \frac{1}{a} \operatorname{Ei} \left( \frac{ay^2}{x+y} \right) e^{-ay} + \frac{2}{a} \operatorname{E}_1 \left( \frac{axy}{x+y} \right) \quad (6.35)$$

Die rechte Seite ist invariant bezüglich einer Vertauschung der Variablen  $x, y$ , wie es gemäß der linken Seite auch sein muß. Dementsprechend erfüllt das bestimmte Integral (6.34) die Symmetrierelationen  $J(\alpha, \beta, \gamma, \delta; a) = J(\gamma, \delta, \alpha, \beta; a)$  und  $J(\alpha, \beta, \gamma, \delta; a) = J(\beta, \alpha, \delta, \gamma; a)$ .

Bei dem Einsetzen der Integralgrenzen ist zu beachten, daß hier zuerst die Grenzen bezüglich  $x$  einzusetzen sind und in den dann entstehenden Ausdruck die Grenzen bezüglich  $y$ . Das ergibt insgesamt:

$$\begin{aligned} a J(\alpha, \beta, \gamma, \delta; a) = & +\operatorname{Ei} \left( \frac{a\beta^2}{\beta+\delta} \right) e^{-a\beta} + \operatorname{Ei} \left( \frac{a\delta^2}{\beta+\delta} \right) e^{-a\delta} + 2 \operatorname{E}_1 \left( \frac{a\beta\delta}{\beta+\delta} \right) \\ & -\operatorname{Ei} \left( \frac{a\alpha^2}{\alpha+\delta} \right) e^{-a\alpha} - \operatorname{Ei} \left( \frac{a\delta^2}{\alpha+\delta} \right) e^{-a\delta} - 2 \operatorname{E}_1 \left( \frac{a\alpha\delta}{\alpha+\delta} \right) \\ & -\operatorname{Ei} \left( \frac{a\beta^2}{\beta+\gamma} \right) e^{-a\beta} - \operatorname{Ei} \left( \frac{a\gamma^2}{\beta+\gamma} \right) e^{-a\gamma} - 2 \operatorname{E}_1 \left( \frac{a\beta\gamma}{\beta+\gamma} \right) \\ & +\operatorname{Ei} \left( \frac{a\alpha^2}{\alpha+\gamma} \right) e^{-a\alpha} + \operatorname{Ei} \left( \frac{a\gamma^2}{\alpha+\gamma} \right) e^{-a\gamma} + 2 \operatorname{E}_1 \left( \frac{a\alpha\gamma}{\alpha+\gamma} \right). \end{aligned} \quad (6.36)$$

Mit diesem Ergebnis lautet das Absorptionspotential für die Kohl-Weickenmeier Streuamplituden

$$\mu_2^{\text{TDS}}(\mathbf{s}) = \frac{\pi}{k^2} \left[ e^{-u^2 s^2} J(0, b, 0, b'; s^2) - J(u^2, b + u^2, u^2, b' + u^2; s^2) \right]. \quad (6.37)$$

Somit brauchen wir von der Gleichung (6.36) die Spezialfälle

$$J(\alpha, \beta, \gamma = \alpha, \delta; a) \quad \text{und} \quad J(\alpha = 0, \beta, \gamma = \alpha, \delta; a).$$

Zunächst ist:

$$\begin{aligned} a \cdot J(\alpha, \beta, \alpha, \delta; a) &= \left[ 2 \operatorname{Ei} \left( \frac{1}{2} a\alpha \right) - \operatorname{Ei} \left( \frac{a\alpha^2}{\beta + \alpha} \right) - \operatorname{Ei} \left( \frac{a\alpha^2}{\alpha + \delta} \right) \right] e^{-a\alpha} \\ &+ \left[ \operatorname{Ei} \left( \frac{a\beta^2}{\beta + \delta} \right) - \operatorname{Ei} \left( \frac{a\beta^2}{\beta + \alpha} \right) \right] e^{-a\beta} \\ &+ \left[ \operatorname{Ei} \left( \frac{a\delta^2}{\beta + \delta} \right) - \operatorname{Ei} \left( \frac{a\delta^2}{\alpha + \delta} \right) \right] e^{-a\delta} \\ &+ 2 \operatorname{E}_1 \left( \frac{a\beta\delta}{\beta + \delta} \right) + 2 \operatorname{E}_1 \left( \frac{1}{2} a\alpha \right) - 2 \operatorname{E}_1 \left( \frac{a\alpha\delta}{\alpha + \delta} \right) - 2 \operatorname{E}_1 \left( \frac{a\beta\alpha}{\beta + \alpha} \right). \end{aligned} \quad (6.38)$$

Dieser Ausdruck stimmt mit der Formel (C.10) von A. Weickenmeier [127] überein.

Wegen der logarithmischen Singularität des Exponentialintegrals am Nullpunkt formen wir die Terme in Gleichung (6.38) so um, daß sich deren Singularitäten für  $\alpha \rightarrow 0$  gegenseitig wegheben. Zu dem Ende beachten wir, daß gemäß [3], (5.1.10/11) gilt:

$$\operatorname{Ei}(z) = +C + \ln z + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(+z)^n}{nn!}, \quad (z > 0), \quad (6.39)$$

$$\operatorname{E}_1(z) = -C - \ln z - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-z)^n}{nn!}, \quad (|\arg z| < \pi), \quad (6.40)$$

worin  $C = 0.5772 \dots$  die übliche Bezeichnung für die Eulersche Konstante ist. Für die Frage nach dem Grenzwert des Ausdrucks (6.38) für  $\alpha \rightarrow 0$  sind nur die ersten beiden Terme der obigen Reihenentwicklungen von Belang.

Damit wird aus

$$\lim_{\alpha \rightarrow 0} \operatorname{Ei} \left( \frac{1}{2} a\alpha \right) e^{-a\alpha} + \operatorname{E}_1 \left( \frac{1}{2} a\alpha \right) = 0$$

und

$$\begin{aligned} \lim_{\alpha \rightarrow 0} \left[ \operatorname{Ei} \left( \frac{a\alpha^2}{\beta + \alpha} \right) + \operatorname{Ei} \left( \frac{a\alpha^2}{\alpha + \delta} \right) \right] e^{-a\alpha} &+ 2 \left[ \operatorname{E}_1 \left( \frac{a\alpha\delta}{\alpha + \delta} \right) + \operatorname{E}_1 \left( \frac{a\beta\alpha}{\beta + \alpha} \right) \right] \\ &= -2C - \ln \beta a - \ln \delta a, \end{aligned}$$

sodaß entsteht

$$\begin{aligned} a \cdot J(0, \beta, 0, \delta; a) &= 2C + \ln \beta a + \ln \delta a + 2 \operatorname{E}_1 \left( \frac{a\beta\delta}{\beta + \delta} \right) \\ &+ \left[ \operatorname{Ei} \left( \frac{a\beta^2}{\beta + \delta} \right) - \operatorname{Ei}(a\beta) \right] e^{-a\beta} \\ &+ \left[ \operatorname{Ei} \left( \frac{a\delta^2}{\beta + \delta} \right) - \operatorname{Ei}(a\delta) \right] e^{-a\delta}. \end{aligned} \quad (6.41)$$

Dies stimmt mit der Formel (C.11) von A. Weickenmeier [127] überein.

Für den Grenzfall  $a = 0$  rechnet man am einfachsten das sich hierfür aus (6.34) ergebende Integral direkt aus:

$$J(\alpha, \beta, \gamma, \delta; 0) = \int_{\alpha}^{\beta} \int_{\gamma}^{\delta} \frac{dx dy}{x + y} = \alpha \ln \frac{\alpha + \gamma}{\alpha + \delta} + \beta \ln \frac{\beta + \delta}{\beta + \gamma} + \gamma \ln \frac{\gamma + \alpha}{\gamma + \beta} + \delta \ln \frac{\delta + \beta}{\delta + \alpha} \quad (6.42)$$

Vergleicht man die Formel (6.36) mit den obigen Formeln für  $a = 0$ , so sieht man, daß sich in diesem Grenzfall offenbar die logarithmischen Terme der Ei-Funktionen gegen die der  $E_1$ -Funktionen wegheben, denn die vier Logarithmen mit den Vorfaktoren  $\alpha, \beta, \gamma, \delta$  kommen alle von den Termen in Formel (6.36) her, die mit einer Exponentialfunktion multipliziert werden. Das heißt also, daß der Gesamtausdruck (6.37) in dieser Form numerisch empfindlich gegen Rundungsfehler ist. Daneben sind die Formeln (6.38) und (6.41) in dieser Form auch wegen der logarithmischen Singularität des Exponentialintegrals am Nullpunkt numerisch problematisch. Man hat ferner auch zu bedenken, daß die rechte Seite der Formel (6.36) noch durch  $a$  dividiert werden muß und  $a$  Null bzw. klein sein kann. In der für kleine  $a$  gültigen Formel sollte also diese Division schon analytisch ausgeführt sein. Für große Argumente divergiert das Exponentialintegral  $Ei(z)$  außerdem exponentiell. Dies wird aber durch die zusätzliche Exponentialfunktion so gegenkompensiert, daß das Produkt beider exponentiell verschwindet.

Bei den in den Argumenten der Funktionen stehenden Ausdrücken der Form

$$\epsilon = a \cdot \frac{\{x^2, xy, y^2\}}{x + y} \quad (6.43)$$

sind die eingehenden Koeffizienten  $x, y$  positiv und kleiner als  $\sqrt{2}$ , aber möglicherweise Null bzw. sehr klein. Die Variable  $a$  ist zwar auch positiv, aber möglicherweise ist  $a \gg 1$ . Es sollte also hinreichend sein, wenn man bei der numerischen Auswertung dieser Formel die drei Fälle  $(\gamma = \alpha) \rightarrow 0$  und  $a < 1$ , sowie wenn  $a \geq 1$ , die Fälle  $\epsilon < 1$  und  $\epsilon \geq 1$  unterscheidet. Für die numerische Auswertung der Formel (6.36) ist ferner der folgende Umstand hilfreich: Man kann aus Formel (6.35) Terme die nur von einem der Argumente  $x$  oder  $y$  abhängen, also von der Form  $f(x; a)$  oder  $f(y; a)$  sind, herausstreichen, da sie sich beim Einsetzen aller Integralgrenzen exakt aufheben werden. Man wird daher bspw. anstatt  $\log(ax^2/x + y)$  besser  $-\log(x + y)$  schreiben, da der Term  $\log ax^2$  für den Wert des bestimmten Integrals irrelevant ist.

Für große Argumente berücksichtigt man das exponentielle Verhalten der Exponentialintegrale am besten explizit via

$$Ei(az) = e^{+az} ei(az), \quad E_1(az) = e^{-az} e_1(az),$$

da dann alle zusammengehörigen Terme in Formel (6.36) den gleichen exponentiellen Faktor bekommen. Die hier mit  $ei$  und  $e_1$  bezeichneten Funktionen sind schnell konvergierende asymptotische Entwicklungen bzw. Kettenbruchentwicklungen für große Argumente.

## 6.8 Die Phasenmatrix $P(\mathbf{s})$

Allgemein ist die Phasenmatrix  $P$  gegeben als

$$P(\mathbf{s}) = \hat{\mathcal{F}} \sum_l \delta(\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}_l) = \sum_l \exp(i\mathbf{s}\boldsymbol{\rho}_l) \quad (6.44)$$

worin die Summe über  $l$  über alle Atome der Superzelle läuft. Diese Phasenmatrix dient dazu Summen der Form<sup>11</sup>

$$g(\boldsymbol{\rho}) = \sum_l f(\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}_l) = \hat{\mathcal{F}}^{-1} \left\{ f(\mathbf{s}) \cdot \hat{\mathcal{F}} \sum_l \delta(\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}_l) \right\} = \hat{\mathcal{F}}^{-1} \{ f(\mathbf{s}) \cdot P(\mathbf{s}) \} \quad (6.45)$$

mit Hilfe des Faltungstheorems für die Fourier-Transformation zu berechnen, da man hier rechter Hand nur einmal eine Matrix  $P(\mathbf{s})$  berechnen muß, um die Matrix  $g(\boldsymbol{\rho})$  für alle  $\boldsymbol{\rho}$  auf einem periodischen Bildausschnitt zu bestimmen, während man bei der Formel linker Hand für alle  $\boldsymbol{\rho}_l$  sämtliche Matrixelemente von  $f$  nach  $g$  unter Beachtung periodischer Randbedingungen umkopieren muß. Außerdem wird i. allg. der Wert von  $\boldsymbol{\rho}_l$  nicht genau der Position eines Pixels in der Matrix von  $f$  entsprechen, sodaß man zusätzlich ein Interpolationsverfahren anwenden muß. Abgesehen davon zeigt es sich, daß beim Multislice-Verfahren die Funktion  $f$  natürlicherweise ohnehin im Fourier-Raum vorliegt, sodaß sich auch der Zeitaufwand für die Berechnung der inversen Fourier-Transformation heraushebt.

Offensichtlich erfüllt die so definierte Phasenmatrix  $P$  die Punktsymmetrie Relation  $P(\mathbf{s}) = P^*(-\mathbf{s})$ , die man unter Umständen zur Reduzierung des Berechnungsaufwandes für die Phasenmatrix  $P$  bzw. für Berechnungen nach der Formel (6.45) heranziehen kann. Dies ist insbesondere dann von Vorteil, wenn die darin eingehende Funktion  $f$  auch punktsymmetrisch zum Koordinatenursprung ist, wenn also  $f(\mathbf{s}) = f(-\mathbf{s})$  oder  $f(\mathbf{s}) = f^*(-\mathbf{s})$  gilt.

Numerisch kann man sich die Phasenmatrix  $P$  auf die oben angedeuteten zwei verschiedenen Weisen verschaffen.

### 6.8.1 Die Integer-Phasen Methode

Hier wird sie gemäß dem mittleren Ausdruck in Formel (6.44) berechnet, indem man im Ortraum eine  $N_x \times M_y$ -Matrix mit der Eigenschaft

$$P_{nm}(\boldsymbol{\rho}) = \begin{cases} 1 & : n \equiv [x_l \cdot N_x] \bmod N_x, m \equiv [y_l \cdot M_y] \bmod M_y \\ 0 & : \text{sonst} \end{cases} \quad (6.46)$$

aufbaut.<sup>12</sup> Anschließend wird von dieser Matrix die numerische Fourier-Transformierte berechnet. Das bedeutet, daß hier die Relation  $P(\mathbf{s}) = P^*(-\mathbf{s})$  nicht zur Reduzierung des Berechnungsaufwandes für die Phasenmatrix herangezogen werden kann.

Darin bedeutet  $[\dots]$  entweder die „Gausssche“ Treppenfunktion oder eine Rundung auf die nächstliegende ganze Zahl. Die dadurch verursachten lateralen Versetzungen von den „wahren“ Pixelpositionen führen jedoch bei Kristallen i. allg. zu solch sichtbaren Artefakten im

<sup>11</sup>Wir übergehen hier der Einfachheit halber den Umstand, daß darin  $f$  für unsere Zwecke noch von der Atomsorte, also insbesondere von dessen Ordnungszahl  $Z$ , abhängt. Die deshalb hier eigentlich notwendigen doppelten Indizes an  $\boldsymbol{\rho}_l$  würden nur die Übersichtlichkeit der Formeln stören. Der übliche Ausweg hier  $f$  mit demselben Index wie  $\boldsymbol{\rho}_l$  zu versehen, führt bezüglich der konkreten Berechnung in die Irre. Natürlich wird man zweckmäßigerweise alle gleichen Atome zu einer Gruppe zusammenfassen, um nicht immer wieder die gleichen Ausdrücke aufs Neue ausrechnen zu müssen.

<sup>12</sup>In praxi hat man die 1 als Addition von 1 zu einer im voraus gelöschten Matrix zu lesen, denn es können ja wegen der Projektion in z-Richtung mehrere Atome auf der gleichen Pixelposition liegen.

Beugungsbild, wie es in der folgenden Abbildung 6.11 exemplarisch dargestellt ist. Es gibt aber auch Fälle, in denen die Atompositionen  $(x_l, y_l)$  zufällig Teiler der Matrixdimensionen  $N_x$  und  $M_y$  sind. Dann treten diese Artefakte nicht auf. Daher ist hier eine Kur, für die numerische Fourier-Transformation eine Primfaktor Fast-Fourier-Transformation (FFT) zu verwenden, sodaß unter den Primfaktorzerlegungen der Matrixdimensionen  $N_x$  und  $M_y$  auch andere Primfaktoren als 2 vorkommen dürfen. Dabei ist allerdings zu bedenken, daß Primfaktor-FFT Implementierungen in der Regel langsamer sind als reine Faktor-2 FFT Implementierungen.<sup>13</sup>

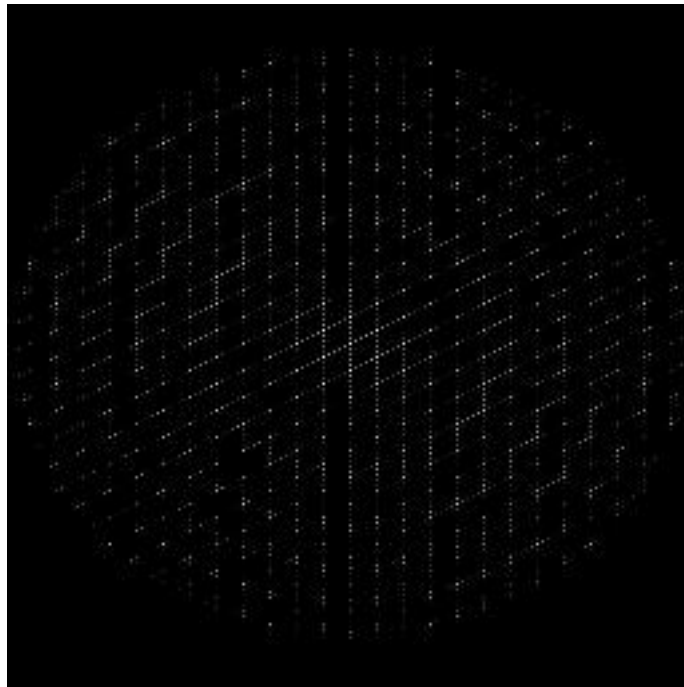


Abbildung 6.11: Entstehung von Satelliten Reflexen im Beugungsbild durch inkomensurable Abtastung. Die hier deutlich sichtbare, elliptische Verzerrung des Bildes beruht darauf, daß hier auf eine Korrektur des Seitenverhältnisses (s. Anhang F) verzichtet wurde, um die daher rührenden Artefakte nicht mit den Artefakten, die von der Berechnungsmethode der Phasenmatrix herrühren, zu vermengen. Die durch inkomensurable Abtastung entstehenden Gitterbaufehler der Elementar- oder Superzelle werden durch die diskrete Fourier-Transformation periodisch fortgesetzt. Dadurch entstehen (schwächere) Nebenmaxima („Geister“). Diese sind auch in der Abbildung 6.14 und der Abbildung 3(a) in [90] gut sichtbar.

Da diese Methode nur von der Füllrate mit der die Atompositionen in der Matrix  $P_{nm}$  gesetzt werden können abhängt, ist sie sehr schnell. Sie ist deshalb für amorphe Objekte die Methode der Wahl.

## 6.8.2 Die akkuraten Phasen Methoden

Hier wird die Phasenmatrix gemäß der rechten Seite von Formel (6.44) berechnet. Diese Berechnungsmethode für die Phasenmatrix  $P$  ist die sogenannte *akkurate Phasen Methode* (AKUPHASE).

Sie ist i. allg. mit einem recht hohen Zeitaufwand verbunden, da hier für alle  $\rho_l$  eine komplette  $N_x \times M_y$ -Matrix mit den Funktionswerten einer komplexen Exponentialfunktion ge-

<sup>13</sup>Aus diesem Grund unterstützt **YaMS** immer beide Arten von FFT Implementierungen, d. h. man kann verschiedene FFT Implementierungen für die Faktor-2 FFT und die Primfaktor-FFT spezifizieren.

füllt werden muß, was pro Funktionswert etwa 200 CPU-Taktzyklen benötigt.

Bei kristallinen Objekten kann man deren Periodizität aber nutzen, um diese Rechnung erheblich abzukürzen. Numerisch benötigt man die Phasenmatrix nämlich nur an den diskreten Punkten  $s_{nm} = n_j g^j$ . Da nun  $s_{nm} \cdot \rho_l = n_j g^j \cdot x_l^k g_k = 2\pi \cdot n_k x_l^k \equiv 2\pi \cdot (n \cdot x_l + m \cdot y_l)$  und sich ferner in einem Kristall die Atompositionen  $(x_l, y_l)$  regelmäßig wiederholen:

$$(x_l, y_l) \mapsto (x_{k,p}, y_{k,q}) = \left( \frac{x_k + p}{N}, \frac{y_k + q}{M} \right),$$

kann man, gemäß einer Bemerkung von Kirkland [66][67], die Summe über alle Atome einer  $N \times M$ -Superzelle, anstatt mit  $N \cdot M$  Auswertungen der komplexen Exponentialfunktion  $e^{i\varphi}$  auch mit nur  $N + M$  Auswertungen gewinnen, indem man das Multiplikationstheorem der Exponentialfunktion verwendet. Dies ergibt die sogenannte *Kristall-Multislice* Methode (KRISTAL-MS bzw. kurz: KMS) zur Berechnung der Phasenmatrix:

$$\begin{aligned} P_{n,m} &= \sum_{l=1}^{A \cdot N \cdot M} \exp(2\pi i \cdot (n \cdot x_l + m \cdot y_l)) = \sum_{k=1}^A \sum_{p=0}^{N-1} \sum_{q=0}^{M-1} \exp(2\pi i \cdot (n \cdot x_{k,p} + m \cdot y_{k,q})) \\ &= \sum_{k=1}^A \left\{ \sum_{p=0}^{N-1} \exp\left(2\pi i \cdot \frac{n \cdot (x_k + p)}{N}\right) \right\} \cdot \left\{ \sum_{q=0}^{M-1} \exp\left(2\pi i \cdot \frac{m \cdot (y_k + q)}{M}\right) \right\} \quad (6.47) \end{aligned}$$

Darin bedeutet  $A$  die Anzahl der Atome in der Einheitszelle des Kristalls.

Allerdings entgeht es hier Kirkland [66][67], daß man nun diese  $N + M$  Auswertungen der komplexen Exponentialfunktion durch eine einzige Auswertungen ersetzen kann. Die Terme in den geschweiften Klammern sind ja einfache geometrische Reihen

$$\sum_{p=0}^{N-1} \exp\left(2\pi i \cdot \frac{n \cdot (x_k + p)}{N}\right) = \exp\left(2\pi i \cdot \frac{n \cdot x_k}{N}\right) \cdot \sum_{p=0}^{N-1} \exp\left(2\pi i \cdot \frac{n \cdot p}{N}\right),$$

sodaß sich mit Hilfe der Summenformel der geometrische Reihe

$$\sum_{n=0}^{N-1} e^{inu} = \frac{e^{iNu} - 1}{e^{iu} - 1} = \frac{\sin \frac{Nu}{2}}{\sin \frac{u}{2}} \exp\left\{\frac{i}{2}(N-1)u\right\}$$

für die Phasenmatrix  $P$  zunächst der folgende Ausdruck ergibt:

$$P_{n,m} = \sum_{k=1}^A \exp\left[2\pi i \cdot \left(\frac{n \cdot x_k}{N} + \frac{m \cdot y_k}{M}\right)\right] \cdot \frac{\sin \frac{Nu}{2}}{\sin \frac{u}{2}} e^{\frac{i}{2}(N-1)u} \cdot \frac{\sin \frac{Mv}{2}}{\sin \frac{v}{2}} e^{\frac{i}{2}(M-1)v}$$

mit den Abkürzungen  $u = 2\pi \frac{n}{N}$  und  $v = 2\pi \frac{m}{M}$ .

Da ja nun die Sinusfunktion an ganzzahligen Vielfachen von  $\pi$  verschwindet, ist der Funktionswert  $P(s_{nm}) = P_{n,m}$  überall da Null, wo  $n$  kein Vielfaches von  $N$  oder  $m$  kein Vielfaches von  $M$  ist (d. h. die Nenner nicht auch Null werden). Ist aber gleichzeitig  $n$  Vielfaches von  $N$  und  $m$  Vielfaches von  $M$ , dann ergeben die beiden Sinusfaktoren den Wert  $N \cdot M$ .

Das ergibt also für  $n \equiv 0 \bmod N \wedge m \equiv 0 \bmod M$  und mit den obigen Abkürzungen für  $u$  und  $v$

$$P_{n,m} = N \cdot M \cdot \exp\left\{\frac{i}{2}\{(N-1)u + (M-1)v\}\right\} \cdot \sum_{k=1}^A \exp[i(u \cdot x_k + v \cdot y_k)] \quad (6.48)$$



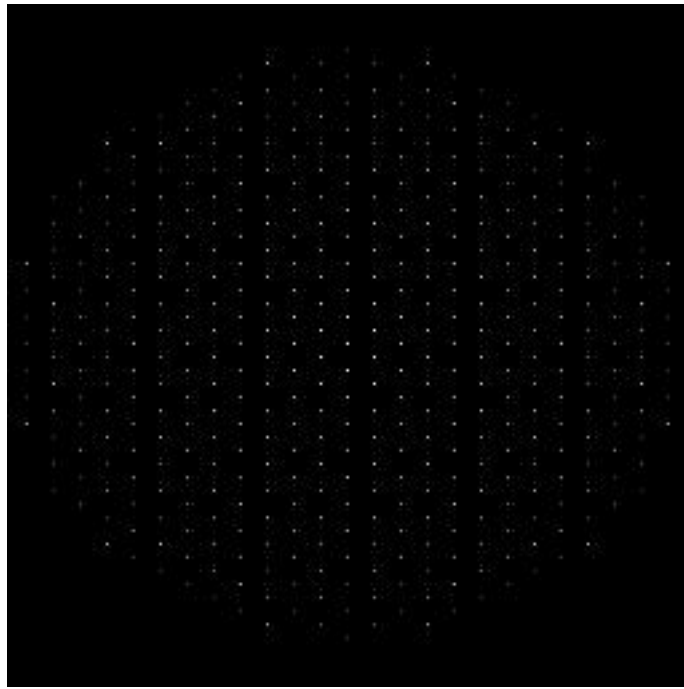


Abbildung 6.12: Vermeidung von Satelliten Reflexen im Beugungsbild durch die Verwendung einer akkurat berechneten Phasenmatrix.

und ansonsten ist  $P_{n,m} = 0$ .<sup>14</sup> Diese Formel liegt der Version 2 der sogenannten *Kristall-Multislice* Methode zugrunde (KMSV2).

In dieser Formel ist allerdings eine kleine Feinheit zu beachten:

Die Exponentialfunktion im Faktor vor der Summe bewirkt, daß die Atome der ersten Einheitszelle, über die rechter Hand summiert wird, nicht links oben in der Bildmatrix erscheinen, sondern in der Bildmitte! Da dieser Effekt natürlich unerwünscht ist, hat man diese Exponentialfunktion bei der Implementation dieses Algorithmus wegzulassen.

Somit hat man es nur nötig über alle Atome der Einheitszelle zu summieren und das Ergebnis mit dem reellen Faktor  $N \cdot M$  zu multiplizieren und dies auch nur für die angegebenen speziellen Werte von  $n$  und  $m$ . Das ergibt dann eine so große Beschleunigung der Rechnung, daß dieses Verfahren mit der obigen Integer-Phasen Methode mithalten kann oder sogar schneller ist. Die Grenze, ab der die Integer-Phasen Methode schneller ist, liegt nun bei ca. 200 anstatt etwa 10 Atomen pro Einheitszelle.

Das Prinzip der Formel (6.48) kann man sich auch anhand der Abbildung 6.13 klar machen.

Ferner kann es sein, daß die Summe über alle Atome der Einheitszelle - der Gitterfaktor - als Summe von Einheitsvektoren in der komplexen Ebene bei Vorliegen spezieller Symmetrien des Kristalls für bestimmte  $n, m$  selbst Null wird. Bei der gegenwärtigen Implementation dieses Algorithmus werden diese Symmetrien allerdings nicht weiter berücksichtigt, so daß es sein kann, daß ein solcher kinematisch exakt verbotener Reflex wegen numerischer Rundungsfehler gewissermaßen schwach erlaubt ist.

Prinzipiell könnte man bei diesen akkuraten Phasen Methoden die Symmetrierelation  $P(s) = P^*(-s)$  für die Berechnung der Phasenmatrix verwenden. In praxi braucht man allerdings

<sup>14</sup>Man ersieht aus der Formel ferner, daß die Argumente der komplexen Exponentialfunktion nie größer als  $4\pi$  mal der maximalen Matrix Dimension sein können, da die fraktionellen xy-Koordinaten immer kleiner 1 sind. Man braucht sich also keine Gedanken über eine eventuelle Bereichsreduzierung zu machen. Insbesondere sind die Argumente immer kleiner als  $2^{63}$ .

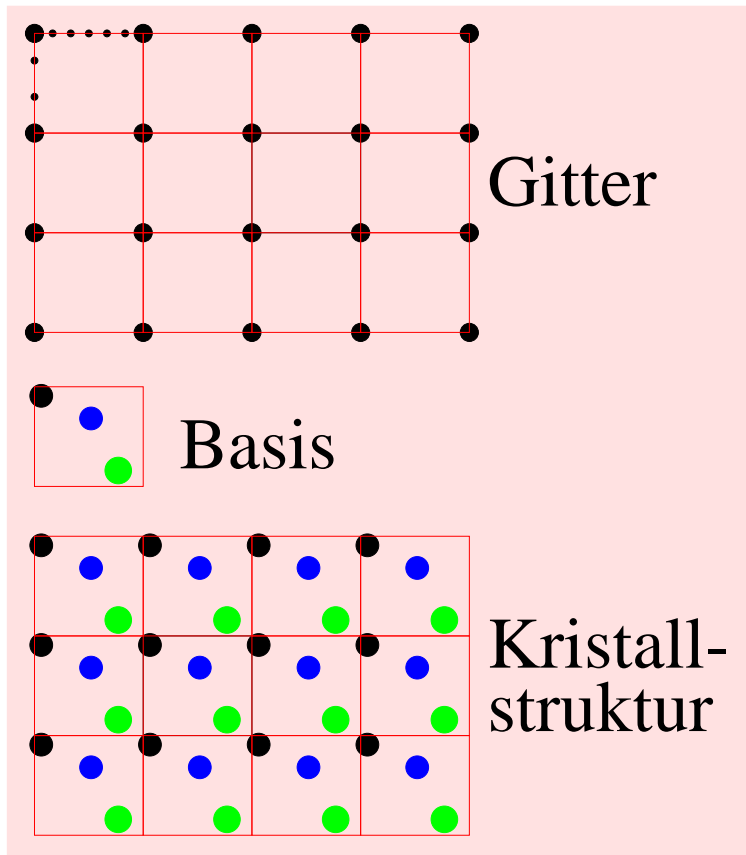


Abbildung 6.13: Beispiel zum KMSV2-Verfahren für eine  $(N = 3) \times (M = 4)$  Superzelle auf einer Matrix mit  $N_x = 9$  und  $M_y = 24$  Pixeln. Die einzelnen Pixel sind in der linken oberen Ecke längs der  $a, b$ -Achsen des Gitters angedeutet. Die Einheitszelle nennt man in diesem Fall auch die Basis.

$P$  nur im Zusammenhang mit der Formel (6.45), sodaß es sich nicht lohnt für  $P$  eine separate Matrix vorzusehen.

### 6.8.3 Effizienz

Als Beispiel für die Effektivität der beiden *Kristall-Multislice* Methoden sei die dem Multislice-Programm von Kirkland [66] beigefügte Datei *cuc1pc.dat* herangezogen. Es handelt sich dabei um einen Kristall aus Chlor-Kupfer-Phtalocyanin Molekülen. Die Abmessungen einer Einheitszelle dieses Kristalles sind  $a_0 = 26.04 \text{ \AA}$ ,  $b_0 = 17.56 \text{ \AA}$  und  $c_0 = 3.76 \text{ \AA}$  mit einer orthogonalen Basis. In einer Einheitszelle liegen dabei insgesamt 114 Atome<sup>15</sup> in einer Ebene. Eine ungefähr quadratische  $2 \times 3$ -Superzelle dieses Kristalls enthält daher insgesamt 684 Atome. Diese Superzelle wurde auf einer Matrix mit  $N_x = M_y = 512$  Pixeln diskretisiert. Für die Simulation wurden in  $z$ -Richtung 10 Ebenen dieses Kristalls mit einer Gesamtdicke von  $3.76 \text{ nm}$  gewählt. Die Abbildung erfolgte unter idealen Bedingungen ( $C_s = C_c = \delta f = 0 \text{ mm}$ ) bei  $120 \text{ keV}$  und einem Aperturwinkel von  $25 \text{ mrad}$  bzw. einem Aperturdurchmesser<sup>16</sup> von  $14.93 \text{ nm}^{-1}$ . Bei der Berechnung des Bildes wurde dessen Seitenverhältnis aufgrund der nicht ganz gleich langen Achsen ( $a = 52.08 \text{ \AA}$ ,  $b = 52.68$

<sup>15</sup>64 C-, 16 N-, 32 Cl- und 2 Cu-Atome.

<sup>16</sup>Das EMS Programm will anstatt des Aperturwinkels den reziproken Wert des Aperturdurchmessers  $d$  haben. Der Zusammenhang beider ist durch die Formel  $(1/d) [1/\text{nm}] = 2 \Theta_0 [\text{mrad}]/\lambda [\text{pm}]$  gegeben. Darin ist  $\Theta_0$  der Aperturwinkel und  $\lambda$  ist die d'Broglie-Wellenlänge des Elektrons.

Å) korrigiert.<sup>17</sup> Beim Beugungsbild wurde darauf verzichtet, da diese Korrektur ein Interpolationsverfahren benötigt, und mir für elastische Beugungsbilder, die ja aus einzelnen diskreten Punkten (Bragg-spots) bestehen, kein dafür adäquates Verfahren bekannt ist.

In der folgenden Tabelle 6.1 sind die Programmlaufzeiten für eine komplette Multislice-Rechnung – also für die Berechnung der elastischen Transmissionsfunktion, die Propagation durch das Objekt, die Propagation durch die Objektivlinse und für die anschließende Geometriekorrektur des Bildes – dargestellt. Wie man sieht, führt die Version 2 der sogenannten *Kristall-Multislice* Methode (KMSV2) zu einer deutlichen Reduktion der erforderlichen Rechenzeiten. In der Tabelle 6.1 fällt auf, daß die Reduktion der Rechenzeit bei der

P55C-200							
Methode	EMS [120]	Kirkland [67]	Dinges [28]	YaMS(B= 0.5)	YaMS(B= 2/3)		
akkurat	245.91	188.14	-	25.28	17.84	40.54	27.22
KMS	-	88.50	-	21.17	16.52	33.25	24.93
KMSV2	-	-	-	7.86	7.68	9.52	9.16
Integer	-	-	45.56	8.58	-	9.90	-
P6-400 (Modell II)							
Methode	EMS [120]	Kirkland [67]	Dinges [28]	YaMS(B= 0.5)	YaMS(B= 2/3)		
akkurat	96.81	86.10	-	11.18	7.86	18.30	12.41
KMS	-	39.55	-	9.53	7.34	15.38	11.63
KMSV2	-	-	-	2.84	2.72	3.50	3.28
Integer	-	-	16.01	2.99	-	3.50	-
K7-600 (Modell I)							
Methode	EMS [120]	Kirkland [67]	Dinges [28]	YaMS(B= 0.5)	YaMS(B= 2/3)		
akkurat	64.19	60.01	-	8.13	5.76	13.39	9.16
KMS	-	27.71	-	7.19	5.26	11.72	8.27
KMSV2	-	-	-	1.99	1.93	2.46	2.33
Integer	-	-	19.26	2.13	-	2.56	-

Tabelle 6.1: Programmlaufzeiten für eine komplette Multislice-Rechnung in Sekunden für verschiedene Multislice-Programme. Hier bezeichnen P55C-200, P6-400 und K7-600 den Prozessor und dessen Taktfrequenz. Mit B wird hier die Konstante zur Vermeidung von Aliasing-Effekten bezeichnet (s. Kapitel F.5 im Anhang F). Im Gegensatz zu den Multislice-Programmen von Stadelmann [120], Kirkland [66][67] und Dinges [28] reagiert die elastische Multislice-Routine von YaMS sehr empfindlich auf den Wert dieses Parameters (s. Anhang E). Der jeweils zweite Wert für die Programmlaufzeit in den letzten vier Spalten gibt die Zeiten bei Verwendung der optionalen sincos-Optimierung zur Berechnung der komplexen Phasenfaktoren  $\exp(i\varphi)$  an. Es bedeutet: - = Das Programm unterstützt diesen Modus nicht.

*Kristall-Multislice* Methode von Kirkland bei seinem Programm deutlicher ausfällt als beim Programm YaMS. Das liegt hier daran, daß Kirkland für beide Fälle dieselbe Routine verwendet.<sup>18</sup> Das nach Formel (6.47) notwendige doppelte Schleifenkonstrukt bremst hierbei die Prozessoren bei der *akkuraten-Phasen* Methode ganz erheblich aus, da hier die inneren, jeweils separat zu berechnenden Schleifen, nur einmal durchlaufen werden. Man rechnet also je Durchlauf insbesondere zweimal einen komplexen Phasenfaktor aus, je einmal für die *x*- und *y*-Koordinate getrennt. Für diesen Spezialfall ist deshalb eine Berechnung gemäß Formel (6.47) extrem ungünstig, denn diese Phasenfaktoren sind es ja gerade, die bei der

<sup>17</sup>Siehe im Kapitel F.3 im Anhang F auf Seite 144f.

<sup>18</sup>Routine SCAMP in atompot.f [66] und scamp in atompot.c [67].

akkuraten-Phasen Methode Rechenzeit kosten.<sup>19</sup> Man sollte daher für diesen Spezialfall eine separate Routine gemäß der rechten Seite von Formel (6.44) vorsehen.

Die Berechnung eines komplexen Phasenfaktors  $\exp(i\varphi)$  wird vom Compiler üblicherweise in zwei separate Aufrufe einer sin- und cos-Funktion mit demselben Argument zerlegt. Jeder dieser Aufrufe dauert immer rund 100 CPU-Taktzyklen und ist damit um zwei Größenordnungen langsamer als eine Addition oder Multiplikation<sup>20</sup> zweier Floatingpoint-Zahlen. Die Floatingpoint-Einheit der ia86-Prozessoren P55C und K7 kennt nun einen sincos-Befehl, mit dem man mit nur ein paar CPU-Taktzyklen mehr den Funktionswert der sin- und cos-Funktionen zum selben Argument bekommt. Allerdings muß man dazu dem Compiler durch Assembler-Programmierung unter die Arme greifen. Da dies mit geringem Aufwand ggf. eine beträchtliche Rechenzeiteinsparung ergibt, ist im Programm **YaMS** hierfür eine optionale Schnittstelle vorhanden, nebst einer sicherlich nicht optimalen Routine für ia86-Prozessoren<sup>21</sup> und für den GNU-gcc Compiler. Ansonsten hilft hier nur die schiere Taktrate des Prozessors.

Das Multislice-Programm von C. Dinges [28] beherrscht nur die *Integer-Phasen* Methode und kann auch keine automatische Korrektur des Seitenverhältnisses des Bildes durchführen.<sup>22</sup> Wie aus der Abbildung 6.17 ersichtlich, führt die von ihm genutzte Methode der Korrektur des Seitenverhältnisses des Beugungsbildes ferner zu teilweise sehr störenden Artefakten durch Pixelaussetzer bzw. Versatz und Auslassung ganzer Zeilen im Beugungsbild.

In der Tabelle 6.1 fällt weiterhin auf, daß C. Dinges' Multislice-Programm auf dem AMD-K7 Rechner im Vergleich zu den anderen Multislice-Programmen überraschend langsam abläuft. Das liegt nicht an der von ihm verwendeten FFT. Diese ist die Fortran Version der 2d-FFT-Implementierung von Kirkland [66][67]. Vielmehr erfolgt der Zugriff des Hauptprogramms auf alle durch zweidimensionale Felder oder Matrizen dargestellten Größen (Wellenfunktion, Transmissionsfunktionen, Fresnelpropagator, Phasenschiebungsmatrix, Bilder, ...) in der falschen Indexreihenfolge, sodaß z. B. bei einer Punktmultiplikation zweier dieser Matrizen, wie bei der zentralen Schleife der Fresnel-Propagation

```

Do n= 0,Nx-1
  Do m= 0,My-1
    Psi(n,m)= fres(n,m)*Psi(n,m)
  Enddo
Enddo

```

in großen Sprüngen auf den Hauptspeicher zugegriffen wird. Hier erwischt C. Dinges den AMD-K7 Rechner an seiner Achillesferse: relativ hohe Latenzzeiten der gegenwärtigen Chipsätze für diesen Prozessor beim Hauptspeicherzugriff, die sich insbesondere beim zufälligen Zugriff auf diesen stark negativ auf die Programmlaufzeiten auswirken. Es ist das ein Beispiel dafür, daß die allgemeine Meinung [67] [64], der Zeitbedarf für eine Multislice Simulation würde hauptsächlich durch die verwendete FFT dominiert, so nicht zutrifft. Im Anhang E wird auf diesen Punkt noch genauer eingegangen werden.

<sup>19</sup>Das ist ja auch von vorneherein klar, denn schließlich ist  $1 \cdot 1 < 1 + 1$ , und wir ersetzen ja durch Formel (6.47) gerade  $N \cdot M$  Auswertungen der komplexen Exponentialfunktion  $e^{i\varphi}$  durch  $N + M$  Auswertungen.

<sup>20</sup>4 CPU-Taktzyklen Latenz und 1 CPU-Taktzyklus Durchsatz bei der vollständig ge-Pipeline'ten Floatingpoint-Einheit des AMD-Athlon K7 Prozessors.

<sup>21</sup>libmath.c. Durch diese Routine wird nur die Berechnung der Phasenfaktoren für die elastische Transmissionsfunktion beschleunigt; nicht jeder Aufruf von  $\exp(i\varphi)$  im Programm.

<sup>22</sup>Diese Korrektur führen das EMS- und das Kirkland-Programm immer durch. Sie ist wegen bilinearer Interpolation auch recht zeitaufwendig.

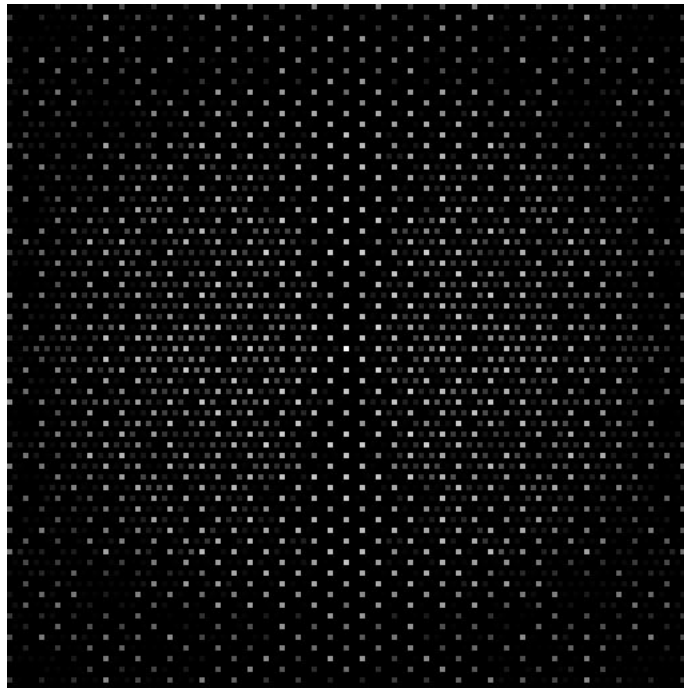


Abbildung 6.14: Entstehung von Satelliten Reflexen im elastischen Beugungsbild des Chlor-Kupfer-Phtalocyanin Kristalls durch die inkomensurable Abtastung der zwischenatomaren Abstände in der  $2 \times 3$ -Superzelle bei der Integer-Phasen Methode. Gezeigt ist hier der zentrale Ausschnitt um den Nullstrahl von  $128 \times 128$  Pixeln aus dem  $512 \times 512$ -er Beugungsbild. Das Seitenverhältnis wurde dabei nicht korrigiert.

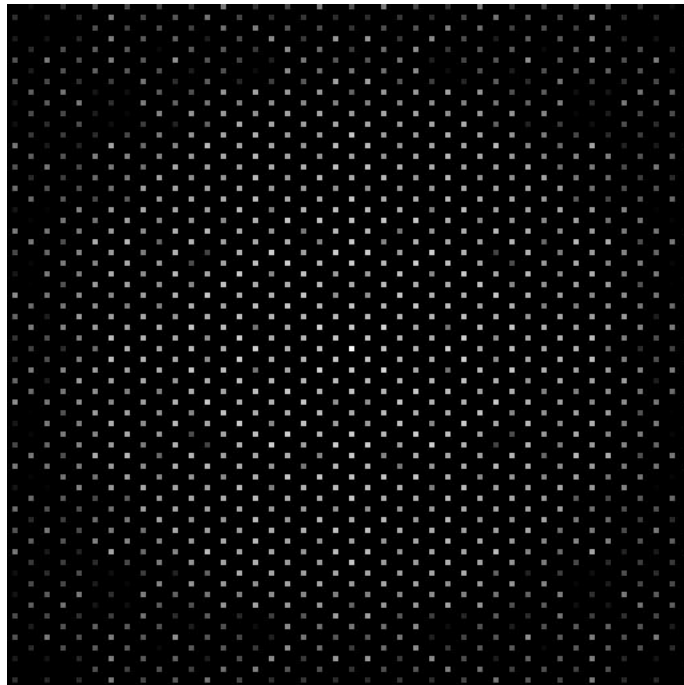


Abbildung 6.15: Das mit der akkuraten Phasen Methode berechnete elastische Beugungsbild. Gezeigt ist hier der zentrale Ausschnitt von  $128 \times 128$  Pixeln um den Nullstrahl aus dem  $512 \times 512$ -er Beugungsbild. Das Seitenverhältnis wurde dabei nicht korrigiert.

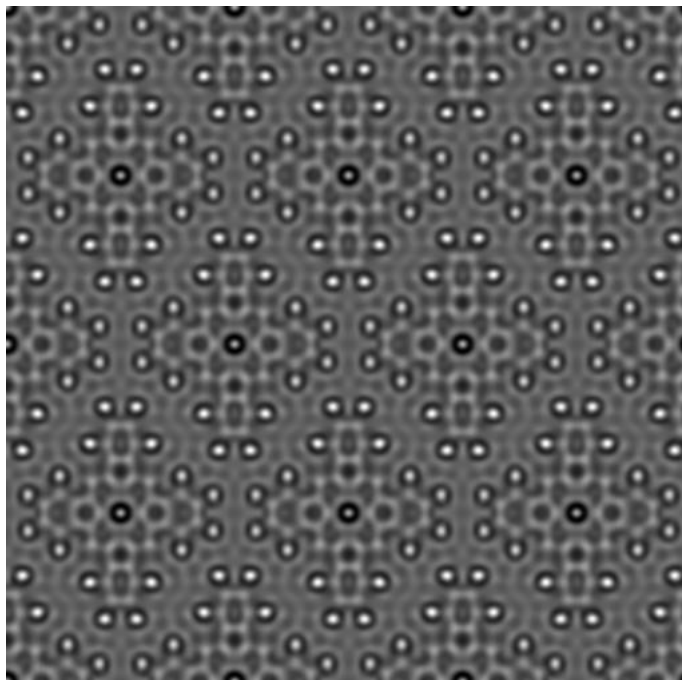


Abbildung 6.16: *Simuliertes elastisches Bild der  $2 \times 3$ -Superzelle des Chlor-Kupfer-Phtalocyanin Kristalls. Das Bild ist für ein 120 keV TEM mit idealer Linse ( $C_s = C_c = \delta f = 0$  mm) und  $\Theta_0 = 25$  mrad auf einer  $512 \times 512$ -er Matrix sowie einer Bandbegrenzung  $B = 2/3$  gerechnet. Zur Berechnung der elastischen Transmissionsfunktion wurde das KMSV2-Verfahren verwendet. Das Seitenverhältnis wurde korrigiert.*

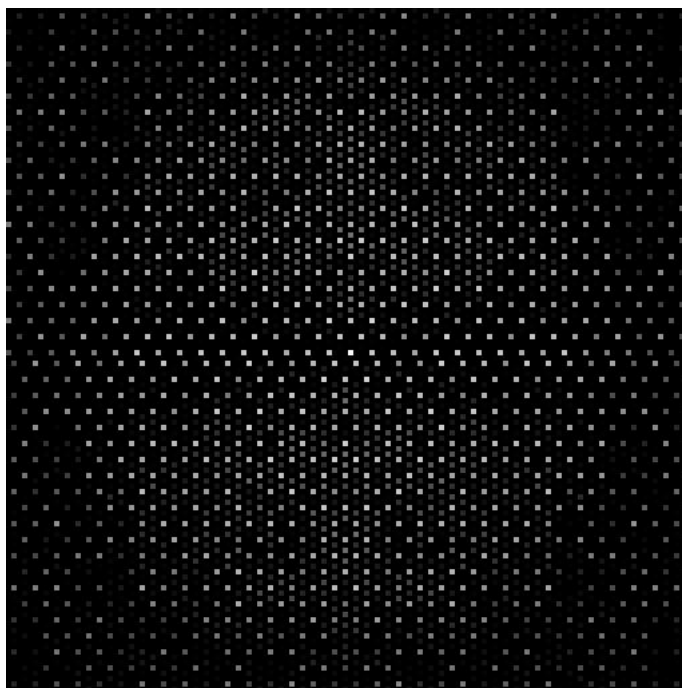


Abbildung 6.17: *Das elastische Beugungsbild der  $2 \times 3$ -Superzelle des Chlor-Kupfer-Phtalocyanin Kristalls berechnet mit dem Multislice-Programm von Dinges [28] vom 12.04.1996. Entstehung von Satelliten Reflexen durch die inkomensurable Abtastung der zwischenatomaren Abstände bei der Integer-Phasen Methode. Im Vergleich mit der Abbildung 6.14 sind hier zusätzliche Artefakte durch Versatz und Auslassung von Pixelzeilen sichtbar, die von einer nichtabschaltbaren, nichtinterpolativen Methode der Korrektur des Seitenverhältnisses herrühren. Ferner wird das Beugungsbild transponiert ausgegeben. Gezeigt ist hier der zentrale Ausschnitt um den Nullstrahl von  $128 \times 128$  Pixeln aus dem  $512 \times 512$ -er Beugungsbild.*

## Kapitel 7

### Einige weitere exemplarische Ergebnisse der Bildsimulation

In diesem Kapitel füge ich noch einige der CBED-Bilder, die zu dem azimuthal gemittelten Intensitätsplot der Abbildung 6.5 auf der Seite 72 gehören, bei.

Als Parameter für die Abbildungsfehler des Kondensors wurden genau dieselben Werte verwendet, die Kirkland in seinem Buch [67] für die Simulation thermisch diffuser Streuung mittels des „frozen lattice modell“ in Kapitel 7.4, Seite 150ff angibt:  $E = 100$  keV und  $C_s = 3.3$  mm, eine Beleuchtungsapertur von 8 mrad, und ein Defokus von  $\delta f = 1353.6$  Å. Sie entsprechen denen eines VG-HB501 Abtast-Durchstrahl Elektronenmikroskops (STEM).

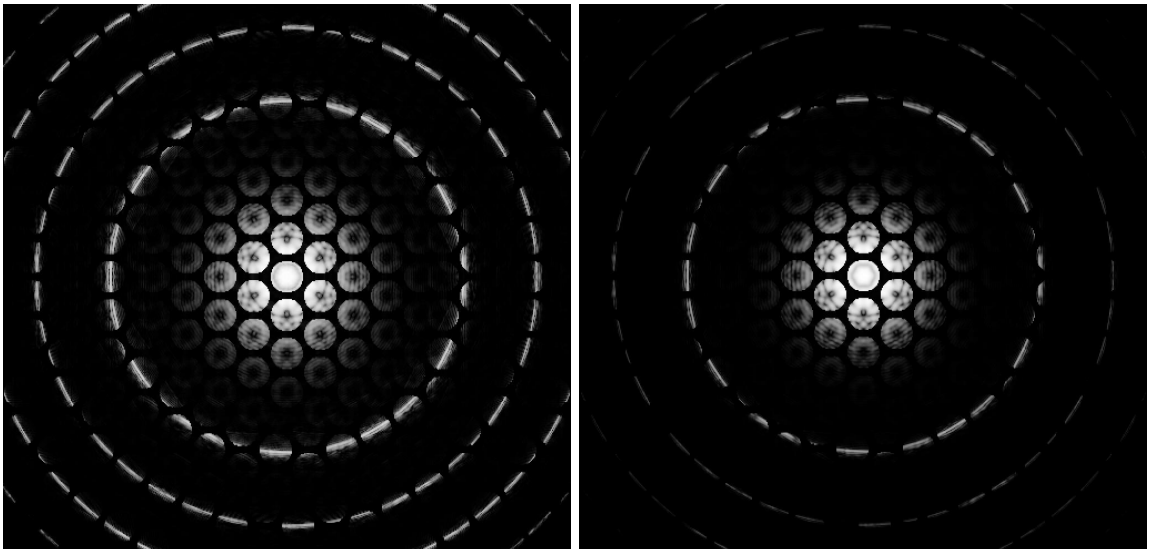


Abbildung 7.1: CBED-Simulation: Links: ideal elastische Simulation. Rechts: Simulationsergebnis der elastischen Simulation mit Berücksichtigung des Temperaturfaktors und der thermisch diffusen und inelastischen Absorption. Gezeigt ist jeweils der zentrale Ausschnitt um den Nullstrahl von  $512 \times 512$  Pixeln aus dem  $1024 \times 1024$ -er Beugungsbild.

Der Siliziumkristall wird in  $[111]$ -Richtung durchstrahlt. Im Unterschied zu Kirkland liegt dieser Bildsimulation eine  $18 \times 10$ -Elementarzellen große Superzelle zugrunde, die auf einer  $1024 \times 1024$ -er Matrix bei einer Bandbegrenzung von  $B = 2/3$  diskretisiert wurde. Diese Superzelle hat die Abmessungen  $|a| = 68.985$  Å,  $|b| = 66.381$  Å und  $c_z = 9.3877$



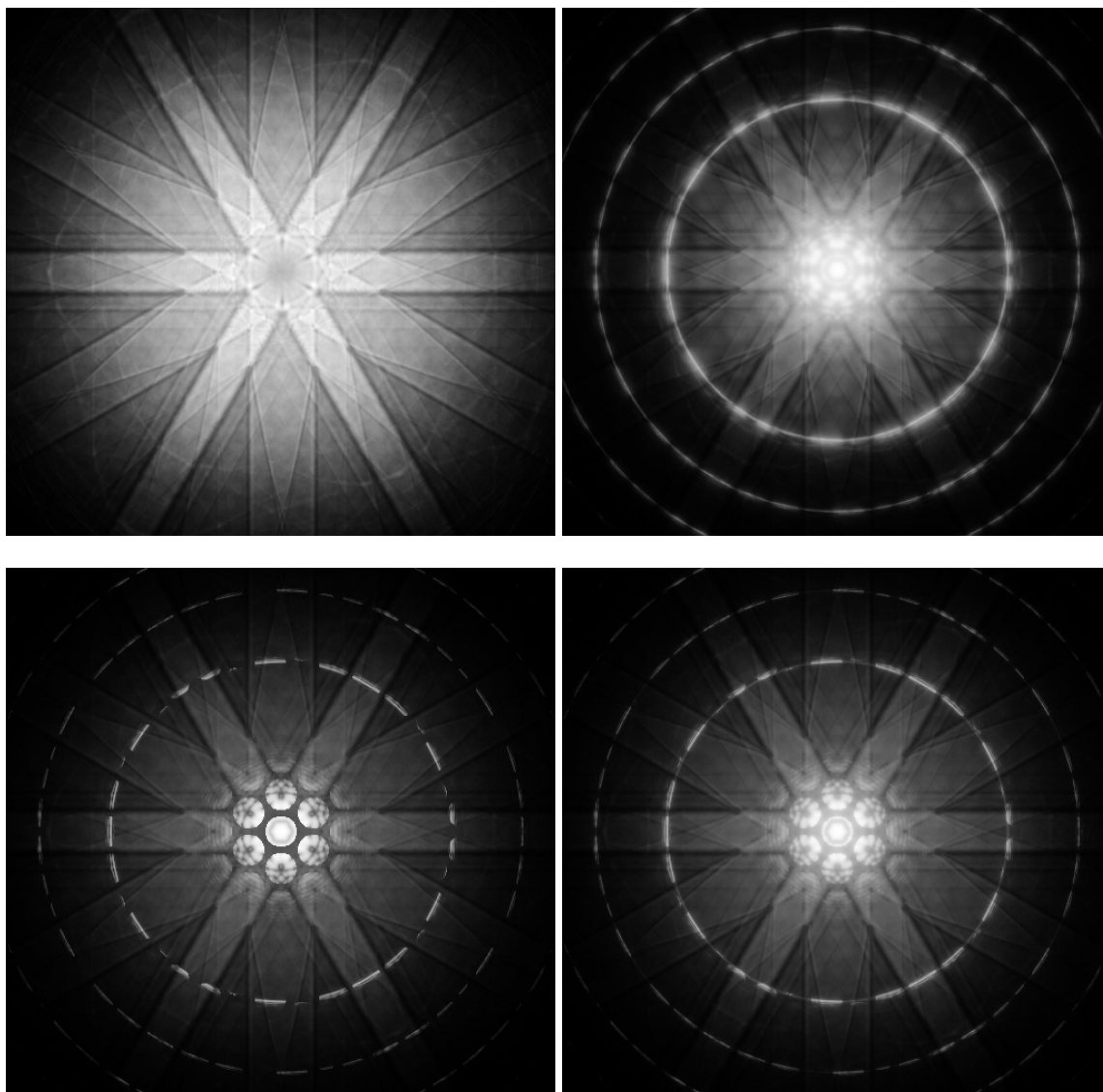


Abbildung 7.2: CBED-Simulation: Das Ergebnis der Dipolnäherung. Oben links: Thermisch diffuses Teilbild. Oben rechts: Inelastisches Teilbild. Unten links: Elastisch gefiltertes Beugungsbild. Unten rechts: Ungefiltertes Beugungsbild. Die Gesamtintensität im ungefilterten Beugungsbild beträgt 0.798. Die Gesamtintensität im elastisch gefilterten Beugungsbild ist 0.467. Gezeigt ist jeweils der zentrale Ausschnitt um den Nullstrahl von  $512 \times 512$  Pixeln aus dem  $1024 \times 1024$ -er Beugungsbild. Siehe Diskussion im laufenden Text.



Å. Die  $\mathbf{a}$ ,  $\mathbf{b}$ -Vektoren wurden hier senkrecht aufeinander stehend gewählt, sodaß 12 Atome in der Elementarzelle liegen. Jeweils 4 Atome liegen dabei auf den 3 verschiedenen Ebenen der Elementarzelle im Abstand  $c_z/3$  voneinander. Die Dicke des Siliziumkristalls beträgt 48.8 nm, was 52 Elementarzellen in z-Richtung bzw. insgesamt 156 Scheibchen ergibt. Für die inelastische Rechnungen wurde eine Elementarzelle (= 3 Scheibchen) zu einem „dicken, inelastischen“ Scheibchen zusammengefaßt. Für den Wert des Parameters  $u$  im Temperaturfaktor wurde 5.477 pm ( $\Leftrightarrow \sigma = 7.746$  pm) gewählt.

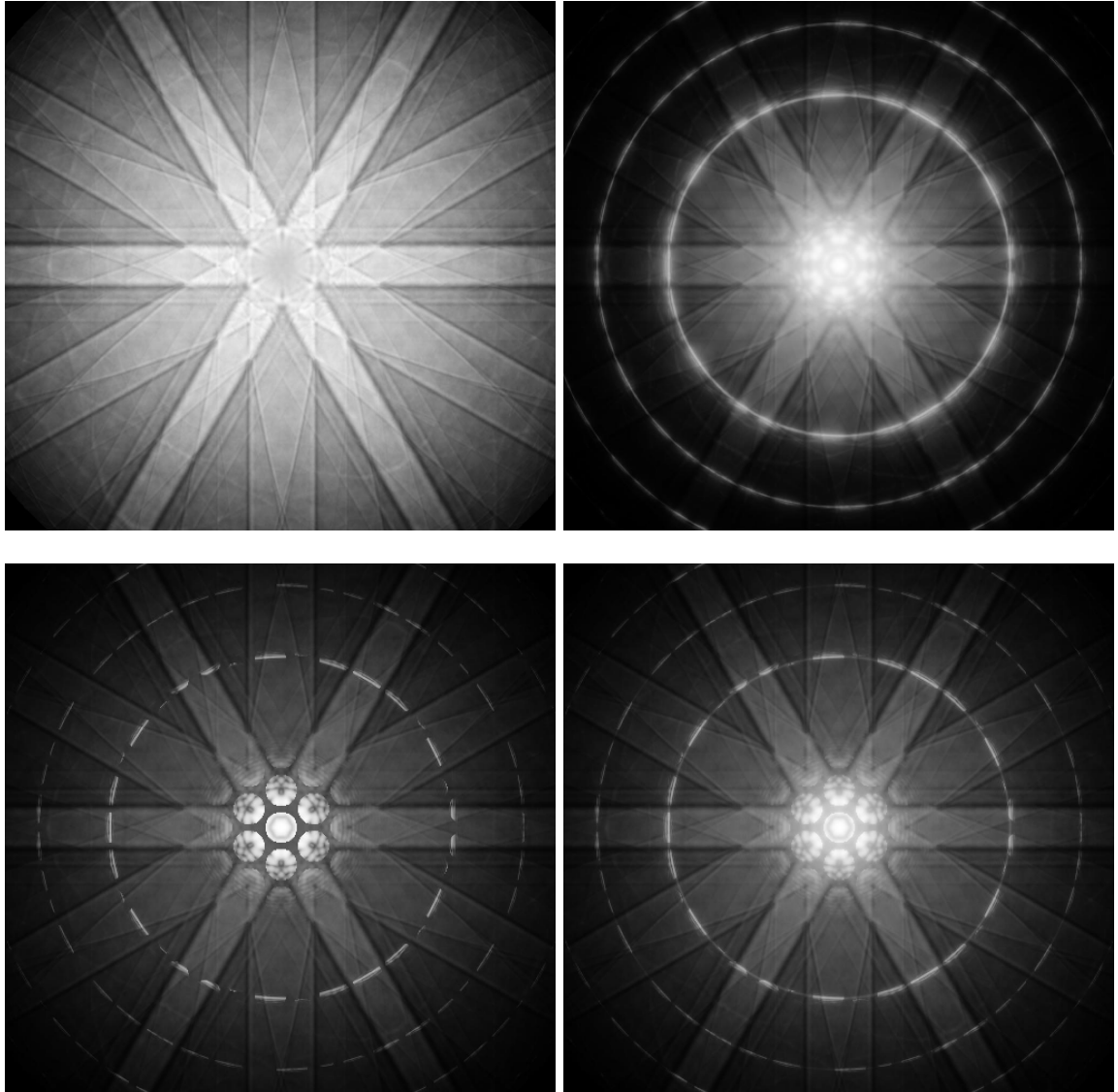


Abbildung 7.3: CBED-Simulation: Thermisch diffus bis einschließlich 5.-te, inelastisch bis 4.-te Entwicklungsordnung. Oben links: Thermisch diffuses Teilbild. Oben rechts: Inelastisches Teilbild. Unten links: Elastisch gefiltertes Beugungsbild. Unten rechts: Ungefiltertes Beugungsbild. Die Gesamtintensität im ungefilterten Beugungsbild beträgt 0.908. Die Gesamtintensität im elastisch gefilterten Beugungsbild ist 0.524. Gezeigt ist jeweils der zentrale Ausschnitt um den Nullstrahl von  $512 \times 512$  Pixeln aus dem  $1024 \times 1024$ -er Beugungsbild. Siehe Diskussion im laufenden Text.

In der Abbildung 7.1 sind die Simulationsergebnisse für die ideal elastische Rechnung und für die elastische Rechnung mit Berücksichtigung des Einflusses der Temperaturbewegung der Atome des Objektes und der Absorption  $\mu_2 = \mu_2^{\text{TDS}} + \mu_2^{\text{in}}$  aufgrund des Vorhandenseins von inkohärenter bzw. inelastischer Streuung im Objekt dargestellt. Vergleicht man

diese mit den entsprechenden experimentellen Ergebnissen in [67], so sieht man, daß das rechte Bild diese wesentlich besser darstellt als die elastische Simulation am Idealkristall mit fest ruhenden Atomen sowie Vernachlässigung der Absorption. Vor allem sind nun die durch die fest ruhenden Atome verursachten abnorm hohen Intensitätswerte in den Ringen um das Zentrum – die HOLZ-Ringe – stark weggedämpft worden. In den experimentellen Bildern gibt es aber ferner noch einen schwach sichtbaren, sternförmigen Untergrund. Dieser kommt durch die zum Nullstrahl und zur elastischen Streuwelle inkohärente Streustrahlung zustande und besteht prinzipiell immer aus zwei Bestandteilen von verschiedener Natur. Zum einen wird durch die Temperaturbewegung der Atome nicht bloß die Intensität der Bragg-Reflexe nach Maßgabe des Temperaturfaktors zu den höheren Raumfrequenzen hin gedämpft, sondern es tritt daneben noch eine inkohärente Streustrahlung mit unverschobener Frequenz auf. Daß sich dabei die Frequenz dieser Streustrahlung nicht verändert, ist eine Konsequenz der Hochenergie-Näherung. Klassisch bedeutet das, daß wir dabei den durch die Atombewegung entstehenden Doppler-Effekt in der Rechnung vernachlässigt haben, was wir angesichts des Geschwindigkeitsverhältnisses zwischen dem Elektron und den Atomkernen sicherlich dürfen.<sup>1</sup> Die korrekte Berücksichtigung dieses Anteils offenbart, daß die Intensität der Bragg-Reflexe zu größeren Raumfrequenzen hin zusätzlich zu dem Temperaturfaktor noch durch einen absorptiven Faktor gedämpft wird, der dafür sorgt, daß die Gesamtintensität der elastischen Streustrahlung und der inkohärenten thermisch diffusen Streustrahlung konstant bleibt: Der Nullstrahl und in der Folge auch die Bragg-Reflexe werden nach Maßgabe der Intensität der inkohärenten Untergrundstrahlung zusätzlich gedämpft.

Der zweite zu berücksichtigende Anteil entsteht durch inelastische Streuung im Objekt. Auch hier gibt es wieder einen absorptiven Anteil, der die Intensität des elastischen Teilbildes verringert, und einen nach Maßgabe dieser Dämpfung stärker werdenden Untergrundanteil. Die Abbildungen 7.2 und 7.3 enthalten die mit dem Simulationsprogramm **YaMS** erstellten exemplarischen Ergebnisse hierzu. Sie berücksichtigen inelastische Einfachstreuung und elastische Mehrfachstreuung im Objekt. In der Abbildung 7.2 sind die Ergebnisse dargestellt, die man erhält, wenn man die auf der Formel (4.61) beruhenden Reihenentwicklungen nur in erster Ordnung bzw. in Dipolnäherung auswertet. Die Abbildung 7.3 stellt die Ergebnisse dar, die man durch eine Reihenentwicklung bei dem Ausdruck für die thermisch diffuse Streuung bis in 5-ter Ordnung und bei dem Ausdruck für die inelastische Streuung bis in 4-ter Ordnung erhält. Beim Vergleich der Bilder in der Abbildung 7.2 mit denjenigen in der Abbildung 7.3 ist zu beachten, daß in allen Fällen die verfügbare 8-bit Grauwertskala maximal ausgenutzt wurde. Es wurden also bei je zwei gleichartigen Bildern keine gemeinsame Grauwertskala benutzt, trotzdem ist in den Bildern der Intensitätszuwachs bei großen Raumfrequenzen durch die Berücksichtigung der höheren Terme der Reihenentwicklung (4.61) deutlich sichtbar. Über die diesbezüglichen genauen Verhältnisse informiert aber der azimuthal gemittelte Intensitätsplot der Abbildung 6.5 auf der Seite 72 besser. Die Intensitätsverhältnisse in diesen Bildern können aus der Tabelle in Abbildung 6.4 auf Seite 71 entnommen werden. Alle hier dargestellten CBED-Bilder sind mit der Methode der statistischen Phasen berechnet worden. Dabei wurden für die Berechnung des thermisch diffusen Teilbildes  $S_{\text{TDS}} = 5$  und für die Berechnung des inelastischen Teilbildes  $S_{\text{in}} = 10$  Sätze statistischer Phasen verwendet. Aufgrund der hier notwendigen Verwendung der Methode der statistischen Phasen zur Bildsimulation treten insbesondere in den thermisch diffusen Beugungsbildern die Kikuchi-Linien nicht deutlich zutage. Man sieht insbesondere, daß man eine deutliche Verbesserung der Sichtbarkeit der Muster in den Bragg-Scheibchen bei den energiegefilterten CBED-Beugungsbildern erhält.

<sup>1</sup>Quantenmechanisch bedeutet das, daß wir den bei der Streuung auftretenden kleinen Energieverlust der Größenordnung 0.1 eV in der Rechnung vernachlässigt haben.

# Kapitel 8

## Zusammenfassung

In dieser Arbeit habe ich versucht, die fundamentalen Prinzipien der Bildsimulation unter Berücksichtigung inkohärenter Streuprozesse akkurat zu beschreiben. Unter Beachtung der Tatsache, daß dem Elektron nach der Wechselwirkung mit dem Objekt keine eigene Wellenfunktion zukommt (d. h. es befindet sich nicht in einem definierten Quantenzustand) sondern nur dem Gesamtsystem – Elektron und Objekt –, wurde das bekannte Multislice-Simulationsverfahren von Cowley und Moodie [21][67] für die elastische Streuung auf den Fall der inelastischen oder inkohärenten Wechselwirkung des Elektrons mit dem Objekt verallgemeinert (Kapitel 4).

Die Berechnung der sich dabei ergebenden Ausdrücke für die Mittelwerte erfolgte hierbei erstmals für einen Festkörper, anstatt wie früher [28][91] für ein Gas. Durch Berechnung in harmonischer Näherung konnte ein gangbarer Weg aufgezeigt werden, wie die bislang immer noch verwendeten einfachen Modelle zumindest im Fall der elastischen und thermisch diffusen Streuung durch realistischere Approximationen ersetzt werden können. Ferner konnten dabei zwei Ungenauigkeiten der bisherigen Ableitung korrigiert werden. Diese beiden Ergänzungen wurden bei der bisherigen Art und Weise, diese Mittelwerte zu berechnen, übersehen.

Diese Verallgemeinerung des elastischen Multislice-Verfahrens erfolgte dabei von Anfang an mittels einer auf dem Boden der Quantenmechanik stehenden Beschreibung, sodaß die bisherige völlig unbefriedigende Situation der Hinzunahme einer klassischen Kohärenzfunktion [84] zur Quantenmechanik [28][91] und die damit im Zusammenhang stehenden begrifflichen und mathematischen Härten hier vermieden wurden. Daß die Quantenmechanik das auch gar nicht nötig hat, erhellt sich aus der im Kapitel 1 zitierten Bemerkung Sommerfelds bzw. spätestens aus der obigen Arbeit. Von den genauen Relationen zwischen einer klassischen Beschreibungsweise mittels Kohärenzfunktionen und einer quantenmechanischen Beschreibungsweise handelt der Übersichtsartikel von Mandel und Shaw [84]. Daß man aber auch bei einer quantenmechanischen Beschreibungsweise auf Korrelationsfunktionen geführt wird, erhellt sich aus den Artikeln von Van Hove [49] und Wick [131]. Zusammen mit der im Artikel von Placzek [99] definierten statischen Approximation und der Diskussion der Hochenergie-Näherung für die inelastische Streuung im Übersichtsartikel von Glauber [45] ergibt die adäquate Berücksichtigung der fundamentalen Tatsache der Quantenmechanik, daß dem Elektron nach der Wechselwirkung mit dem Objekt keine Wellenfunktion zukommt, in ganz natürlicher und naheliegender Art und Weise das hier vorgestellte verallgemeinerte Multislice-Verfahren für elastische und inelastische oder inkohärente Streuprozesse. Um Mißverständnisse zu vermeiden, sei betont, daß die dabei eingeflossene statische Approximation zwar für die praktische Ausführbarkeit dieses Programmes essentiell ist, aber keine für die formale Berechnung notwendige Beschränkung

darstellt. Würde man sie fallen lassen, so könnte man eine formale Verbindung herstellen zwischen der Beschreibung der inelastischen Streuung in Kapitel 4 und der Beschreibung durch Streuamplituden im Kapitel 2. Man bekommt dann die formalen Ausdrücke für die Streuamplituden in Kleinwinkel-Approximation in Form einer Dyson-Reihe und zwar nicht nur, wie in [90] dargestellt, für ein dünnes Scheibchen sondern für das ganze Objekt. Aber es fehlt mir an Platz, diese fehlende Verbindung auszuarbeiten und hier hinzuzufügen. Ich denke auch nicht, daß eine solche Formulierung wirklich brauchbar ist, da außer dem hier dargestellten ersten Entwicklungsterm (die *statische Approximation*) die höheren Korrekturterme, die eine dynamische Reaktion des Objektes bei der Streuung beschreiben, wohl nicht berechnet werden können.

Als allgemeinste Form der quantenmechanischen Beschreibung eines Systems ist die Beschreibung mittels einer Dichtematrix der Verteilung der Koordinaten des Elektrons  $\varrho(\epsilon; \boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}')$  im Prinzip auch auf den in der Elektronenmikroskopie vorkommenden Fall der partiell inkohärenten Beleuchtung anwendbar. Die praktische Durchführung dieses Programmes scheiterte aber bislang an der nicht erfüllten (nicht erfüllbaren ?) Voraussetzung der Auffindung einer hinreichend schnell konvergierenden Reihenentwicklung in bezüglich der Koordinaten 2-dimensionale Produktterme. Denn eine 4- oder 5-dimensionale Beschreibung mittels  $\varrho(\epsilon; \boldsymbol{\rho}, \boldsymbol{\rho}')$  ist mindestens bis in ferne Zukunft nicht wirklich praktisch durchführbar.<sup>1</sup>

Mittels der der Verallgemeinerung des elastischen Multislice-Verfahrens auf inkohärente Streuprozesse zugrunde liegenden statischen Approximation, konnte dann im Kapitel 4 auch leicht der Nachweis geführt werden, daß das sogenannte „frozen lattice modell“ eine korrekte Berücksichtigung der thermisch diffusen Streuung, und zwar in alle Ordnungen der inkohärenten Mehrfachstreuung, ist. Daher treffen die dies bezweifelnden Einwände von Wang [126] nicht zu. Allerdings gilt diese Aussage nur unter der gemachten Voraussetzung der statischen Approximation. Verfeinerungen würden zu Abweichungen von diesem einfachen Bild führen.<sup>2</sup> Da das „frozen lattice modell“ die thermische Streustrahlung in alle Ordnungen im Rahmen der statischen Approximation korrekt beschreibt, ist es evident, daß frühere Aussagen unzutreffend sind, dieses Verfahren würde zu langwierigeren Berechnungen führen, als das hier dargestellte Multislice-Verfahren<sup>3</sup>, bei dem die thermisch diffusen Mittelwerte analytisch berechnet werden.

Mit dem hier vorgestellten Simulationsprogramm **YaMS** (**Y**et **a**nother **M**ulti**S**lice) können Bilder mit Berücksichtigung von elastischen und inelastischen (Einfach-)Streuprozessen für Ruhbild- (TEM), und Abtast- (STEM)<sup>4</sup> Durchstrahlungs-Elektronenmikroskope berechnet werden. Auch entsprechende TEM- und konvergente- (CBED) Beugungsbild Multislice-

<sup>1</sup>Man kann zwar alles formal fein säuberlich damit formulieren, nur wirklich berechnen kann man damit nichts.

<sup>2</sup>Bei der durch die thermische Bewegung hervorgerufenen Streuung gibt es außer dem spektral verschobenen, inkohärenten Term auch spektral verschobene Terme, die durch sogenannte „Phonon“-Anregung zustande kommen.

<sup>3</sup>Das ist schon für den Fall der Einfachstreuung anzuzweifeln, benötigt man doch in diesem Fall für die Berechnung eines thermisch diffusen Bildes im allgemeinen einen Berechnungsaufwand der proportional zu  $A * S * t_{\text{TDS}}(o) * N^2/2$  ist, während beim „frozen lattice“ Verfahren dieser Aufwand wie  $\tilde{S} * N * c_{\text{Trans}}$  skaliert. Darin bedeuten:  $A$ : Anzahl der verschiedenen Atome/Atomsorten,  $t_{\text{TDS}}(o) = o(o+3)/2$ : Anzahl der Teilterme der Reihenentwicklung (4.61) als Funktion der Entwicklungsordnung  $o$ ,  $N$ : Anzahl der Scheibchen, in die das Objekt unterteilt wurde,  $\tilde{S}$ : Anzahl der notwendigen Statistikdurchläufe,  $c_{\text{Trans}} \approx 10$ : Verhältnis des Zeitaufwandes für die Berechnung der elastischen Transmissionsfunktionen zum Zeitaufwand für die Berechnung eines Multislice-Zyklus für ein Scheibchen.

<sup>4</sup>So uns denn in naher Zukunft ein hinreichend performanter Rechner gegeben sein wird, mit dem man inelastische STEM-Bilder auch tatsächlich simulieren könnte, ohne das die dafür notwendige Rechenzeit die Größenordnung *Jahre* hat.

Simulationen sind möglich. Dies geht für periodische und nicht periodische Objekte gleichermaßen. Die Beleuchtung des Objektes erfolgt dabei mangels praktikabler anderweitiger Möglichkeiten bislang vollständig kohärent. Der Einfluß, den die Quellbreite und ein Elektronen-Energieverlust-Spektrum auf den Abbildungsvorgang hat, kann dabei aber berücksichtigt werden. Angesichts der nicht ausreichenden Rechenleistung heutiger Rechner ist man bei der Berechnung der inkohärenten Streubeiträge auf inelastische Einfachstreuung (und elastische Mehrfachstreuung) beschränkt. Das Programm ist aber partiell auf eine spätere Implementierung eines Treibers für die Berücksichtigung von inelastischen Zweifachstreu Prozessen vorbereitet worden.

Ich bin ferner auf einige der Details der konkreten Implementation und der numerischen Berechnung eingegangen (Zerlegung im Fourierraum, Phasenmatrix, . . . ) und habe das Prinzip des implementierten, neuen modifizierten elastischen Multislice Algorithmus im Anhang E detailliert beschrieben.

Ältere Versionen (Pre-Releases) des Programms fanden erfreulicherweise bereits Anwendung in biologischen [104] [105] [124] und materialwissenschaftlichen Untersuchungen.



# Anhang A

## Zum relativistischen Energie-Impuls Satz

Der Betrag des Impulsübertrags beim Stoß wird von zwei Parametern bestimmt: Dem Streuwinkel  $\vartheta$  und dem Verhältnis des Impulsbetrags  $p'$  nach dem Stoß zu dem Impulsbetrag  $p$  vor dem Stoß. Dieses Verhältnis  $p'/p = w(E)$  ist eine Funktion des Energieverlustes  $E$ .

Da sich in der Literatur allerhand „Kurzschlüsse“, aber keine korrekte Ableitung für den Impulsübertrag beim Stoß findet, wird es wohl nichts schaden, dies kurz hierher zusetzen.

Mit der Lichtgeschwindigkeit  $c = 1$  lautet der relativistische Energie-Impuls Satz:

$$E = \sqrt{m^2 + \mathbf{p}^2} - \sqrt{m^2 + \mathbf{p}'^2}, \quad (\text{A.1})$$

$$\mathbf{q} = \mathbf{p}' - \mathbf{p}. \quad (\text{A.2})$$

Bevor man nun den Energiesatz nach  $p'$  auflöst, ist es nützlich sich daran zu erinnern, daß gilt

$$\gamma^2 = 1 + \left(\frac{p}{m}\right)^2, \quad \left(\frac{p'}{p}\right)^2 = w^2. \quad (\text{A.3})$$

Denn dann vereinfacht sich dieser zu

$$\frac{E}{m\gamma} = 1 - \sqrt{1 - u \left(\frac{p}{m\gamma}\right)^2} = \frac{1}{2} u \left(\frac{p}{m\gamma}\right)^2 + \frac{1}{8} u^2 \left(\frac{p}{m\gamma}\right)^4 + \&c. \quad (\text{A.4})$$

Darin wurde  $w^2 = 1 - u$  substituiert. Auflösung nach  $u$  ergibt:

$$1 - w^2 = u = 2\gamma \frac{mE}{p^2} - \frac{E^2}{p^2} = \frac{mE}{p^2} \left\{ 2\gamma - \frac{E}{m} \right\}. \quad (\text{A.5})$$

Für den Betrag des Impulsübertrags  $q$  hat man gemäß des Kosinus-Satzes und mit der Hilfsgröße  $w$

$$\left(\frac{q}{p}\right)^2 = 1 - 2w \cos \vartheta + w^2 = (1 - w)^2 + 4w \sin^2 \frac{\vartheta}{2}. \quad (\text{A.6})$$

Die Größe  $1 - w$  ist also das, was gewöhnlich als der charakteristische Streuwinkel  $\Theta_E$  bezeichnet wird. Und zwar gilt nach dem 6. Satz im zweiten Buch von Euklid

$$\Theta_E = 1 - w = \frac{u}{1 + w}, \quad (\text{A.7})$$

wo die Formel rechter Hand für die numerische Auswertung besser geeignet ist, da  $u$  gewöhnlich klein gegen 1 ist.





# Anhang B

## Berechnung der Mittelwerte

„Nun ist es offenbar, (das ist schon ein schlimmes Wort, wo das steht, kann man sicher sehen, hier ist eine große Schwierigkeit, es ist dieß eine üble Angewohnheit der Mathematiker, die so alt ist, daß ich neulich bei Diophant eine Stelle gefunden habe, wo diese Worte gebraucht sind für einen Satz, für dessen Beweis die jetzige Analysis sich noch anstrengen muß).“

(C.G.J. Jacobi, Vorlesungen über analytische Mechanik, Berlin 1847/48, Vorl.5) [63]

### Der (nicht-)thermische Mittelwert der Coulomb-Wechselwirkung

Die potentielle Energie der Coulomb-Wechselwirkung des Elektrons mit dem Objekt hat die Form

$$-U(x, X, \mathbf{r}) = -\sum_l U(x_l, X_l, \mathbf{r}) = \sum_l \left\{ \frac{Z_l \alpha}{|\mathbf{r} - X_l|} - \sum_{k=1}^{Z_l} \frac{\alpha}{|\mathbf{r} - (X_l + x_{lk})|} \right\}. \quad (\text{B.1})$$

Die Buchstaben  $X_l$ ,  $x_{lk}$  und  $\mathbf{r} = (\boldsymbol{\rho}, z)$  bezeichnen darin jeweils 3-dimensionale Vektoren für den Ort des Atomkerns, der Atomelektronen und „des“ Elektrons. Für die Rechnung werden wir zunächst diese Indizes unterdrücken, sofern es nur auf die Form des zu berechnenden Ausdrucks ankommt.

Die quantenmechanische Mittelung ist gemäß dem 3. Kapitel auszuführen mit den adiabatischen Zustandsfunktionen der Form

$$\langle X, x | n, nm \rangle = \phi_{nm}(X) \Phi_n(X; x), \quad (\text{B.2})$$

wobei sich hier der Index  $n$  an den Zustandsfunktionen auf den  $n$ -ten angeregten elektronischen Objektzustand bezieht und  $m$  die Kernschwingungszustände bezeichnet.

Die 2-dimensionale FOURIER-Transformierte eines Terms des zu berechnenden Mittelwertes [(4.43), Seite 47] der projizierten potentiellen Energie der Coulomb-Wechselwirkung hat damit die Form

$$\int e^{is\rho} \langle nm, n | \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{dz}{|\mathbf{r} - (X + x)|} |0, 00\rangle df_\rho, \quad (\text{B.3})$$

worin  $x, X$  irgendeine der Koordinaten in der obigen Summe bedeuteten soll. Hierbei verhält es sich mit dieser FOURIER-Transformation formal so, daß sie hier nur aus Gründen der leichteren analytischen Auswertung eingeführt wird.

Nun ist es offenbar so, daß man hier die Integration über die  $z$ -Koordinate vorziehen kann, sodaß entsteht

$$\int_{-\infty}^{+\infty} dz \int e^{is\rho} \langle nm, n | \frac{1}{|\mathbf{r} - (X + x)|} |0, 00\rangle df_\rho. \quad (\text{B.4})$$

Das heißt, daß man die zweidimensionale FOURIER-Transformation auch durch eine dreidimensionale FOURIER-Transformation ersetzen kann, wenn man nur beachtet, daß dann im Ergebnis **überall** der transversale Impulsübertrag  $\mathbf{s}$  einzusetzen ist.

Für den Fall daß, wie im Vorderterm in (B.1),  $x = 0$  ist, hat man

$$\int e^{is\mathbf{r}} \langle nm, n | \frac{1}{|\mathbf{r} - X|} |0, 00\rangle dV_r = \int e^{is\mathbf{r}} \langle nm | \frac{\delta_{n,0}}{|\mathbf{r} - X|} |00\rangle dV_r, \quad (\text{B.5})$$

da ja die  $\Phi_n(X; x)$  für jeden Wert der Kernorte  $X$  ein VONS bezüglich der Elektronenkoordinaten  $x$  bilden sollten.

Nun ist es offenbar so, daß man darin die Integrationsreihenfolge vertauschen darf. Man berechnet also zuerst die 3-dimensionale FOURIER-Transformierte von  $1/|\mathbf{r} - X|$  mit Hilfe der Beziehung (D.12) auf Seite 126, was

$$\langle nm | e^{isX} |00\rangle \frac{4\pi\delta_{n,0}}{s^2} \quad (\text{B.6})$$

ergibt.

Der hintere Term ergibt ein etwas verwickelteres Resultat, da man hier die elektronischen Matricelemente wirklich ausrechnen muß

$$\int e^{is\mathbf{r}} \langle nm, n | \frac{1}{|\mathbf{r} - (X + x)|} |0, 00\rangle dV_r. \quad (\text{B.7})$$

Nun ist es offenbar auch hier so, daß man darin die Integrationsreihenfolge nach Belieben vertauschen darf, sodaß entsteht

$$\langle nm, n | e^{is(X+x)} \int \frac{\exp\{i\mathbf{s}(\mathbf{r} - (X + x))\}}{|\mathbf{r} - (X + x)|} dV_r |0, 00\rangle = \frac{4\pi}{s^2} \langle nm, n | e^{is(X+x)} |0, 00\rangle. \quad (\text{B.8})$$

Insgesamt haben wir damit den Ausdruck

$$- \int e^{is\mathbf{r}} \langle nm, n | U |0, 00\rangle dV_r = \frac{4\pi\alpha}{s^2} \langle nm, n | \sum_l e^{isX_l} \left\{ Z_l - \sum_{k=1}^{Z_l} e^{isx_{lk}} \right\} |0, 00\rangle, \quad (\text{B.9})$$

wobei in dem äußeren Matricelement über den Konfigurationsraum der Atomkerne  $X$  integriert wird, während im inneren Matricelement über den Konfigurationsraum  $x$  der Koordinaten der Elektronen für **jede** Kernlage  $X$  zu integrieren ist.

Das Matricelement

$$\langle 0 | \sum_l e^{isX_l} \sum_{k=1}^{Z_l} e^{isx_{lk}} |0\rangle = F(X; \mathbf{s}) \quad (\text{B.10})$$

könnte sinngemäß als Formfaktor bzw. Röntgenstreuamplitude des Objektes, und der Ausdruck

$$\frac{4\pi\alpha}{s^2} \langle 0 | \sum_l e^{isX_l} \left\{ Z_l - \sum_{k=1}^{Z_l} e^{isx_{lk}} \right\} |0\rangle = f(X; \mathbf{s}) \quad (\text{B.11})$$

als dessen Elektronen-Streuamplitude bezeichnet werden [70].<sup>1</sup>

Wegen der bei der adiabatischen Näherung auftretenden Abhängigkeit der elektronischen Zustandsfunktion von der momentanen Kernlage  $X$  hängen diese Streuamplituden hier ebenfalls von dieser Lage ab. Daraus ist ersichtlich, daß wir mit der weiteren Auswertung der Formel (B.9) nur dann fortfahren können, wenn wir die elektronischen Zustandsfunktionen für alle Kernlagen  $X$  kennen und in der Folge auch die zugehörigen Zustandsfunktionen  $\phi_{nm}(X)$  für die Kernvibrationen.

*Derowegen sind wir gezwungen, diese Untersuchung [die Berechnung des thermischen Mittelwertes der Coulomb-Wechselwirkung in adiabatischer Näherung] allhier abubrechen, und wollen wir [denjenigen] Autores die völlige Ausführung dieser Materie überlassen, als welche sie uns [ . . . ] zu liefern versprochen [haben].*

Ich werde mich hier mit der harmonischen Näherung

$$|n, nm\rangle \rightsquigarrow \varphi_{nm}(u) \Phi_n(X_0; x), \quad u = X - X_0 \quad (\text{B.12})$$

bescheiden, bei der die elektronischen Zustandsfunktionen lediglich für die Ruhelage  $X_0$  bekannt sein müssen, was schwierig genug ist. Ferner werden wir annehmen, daß sich die Gesamtwellenfunktion als ein Produkt

$$\varphi_{nm}(u) \Phi_n(X_0; x) = \prod_l \varphi_{nm}^l(u_l) \Phi_n^l(X_0^l; x_l) \quad (\text{B.13})$$

von unabhängigen Atomwellenfunktionen darstellen läßt. Mit den Zustandsfunktionen (B.12) bzw. (B.13) können wir in (B.9) den elektronischen Mittelwert für jedes Atom einzeln berechnen. Wir bezeichnen diesen mit der Abkürzung

$$f_{mn}^l(X_0^l; \mathbf{s}) = \frac{4\pi\alpha}{s^2} e^{i\mathbf{s}X_0^l} \int \Phi_m^{l*}(X_0^l; x_l) \left\{ Z_l - \sum_{k=1}^{Z_l} e^{i\mathbf{s}x_{lk}} \right\} \Phi_n^l(X_0^l; x_l) dV_{x_l} = f_{mn}^l. \quad (\text{B.14})$$

Damit ist in (B.9)  $f_{mn}^l(X_0^l; \mathbf{s})$  lediglich ein multiplikativer Wichtungsfaktor in der Summe über  $l$ , und wir können in (B.9) die Summe über die Atome vor das verbleibende Matrixelement über die Kernwellenfunktionen ziehen

$$- \int e^{i\mathbf{s}r} \langle nm, n | U | 0, 00 \rangle dV_r = \sum_l f_{n0}^l(X_0^l; \mathbf{s}) \int \varphi_{nm}^{l*}(u_l) e^{i\mathbf{s}u_l} \varphi_{00}^l(u_l) dV_{u_l}. \quad (\text{B.15})$$

<sup>1</sup> Wenn wir diese Elektronen-Streuamplitude mit Rücksicht auf Formel (4.18) noch mit dem Faktor  $m\gamma/\hbar^2 k \times k/2\pi$  multiplizieren. Für den Vorfaktor gilt dann

$$4\pi\alpha \frac{m\gamma}{\hbar^2 k} = \frac{4\pi\alpha_S}{\beta} = \frac{2\pi}{k} \frac{m\alpha}{2\hbar^2} \gamma (4\pi)^2 = \frac{2\pi}{k} \frac{2\gamma}{a_B (4\pi)^2} (4\pi)^2.$$

Ferner beachte man noch, daß in der Literatur manchmal der Faktor  $4\pi$  im Betrag für den elastischen Impulsübertrag  $s = 4\pi \sin(\vartheta/2)/\lambda$  herausgenommen wird.

Der eigentlich ja nicht so ganz stimmige Name *Elektronen-Streuamplitude* ist historisch dadurch bedingt, daß für Elektronen  $f$  die Rolle einnimmt, die für Röntgenstrahlung die *Röntgen-Streuamplitude*  $F$  spielt. Der Unterschied zwischen Röntgenstrahlen und Elektronenstrahlen ist ferner der, daß man bei letzteren am Potentialfeld streut. Das ergibt den Faktor  $1/s^2$  im FOURIER-Raum und ferner einen Faktor  $Z - F$ , da die Elektronen auch am Coulomb-Feld des Kerns streuen. Wegen des unterschiedlichen Vorzeichens der Ladung des Kerns und der Elektronen arbeiten beide Terme dabei gegeneinander. Im Unterschied dazu wird bei Röntgenstrahlen die Atomhülle zum „Mitschwingen“ veranlaßt. Der Beitrag der ungleich schwereren Kerne fällt dabei nicht ins Gewicht. Fern von einer der Resonanzfrequenzen des Atoms ist die Streustrahlung dann proportional zur reellen *Röntgen-Streuamplitude*  $F$ . In der Nähe einer Resonanzfrequenz des Atoms wird die *Röntgen-Streuamplitude* komplex. Dies wird als „anormale“ Streuung von Röntgenstrahlen bezeichnet.

Neben einem Matrixelement von dieser Form benötigen wir für den Ausdruck (4.39) bzw. (4.40) den thermischen Mittelwert der Kovarianz  $\mu_{11}$  des Objektpotentials. Das ist im wesentlichen der Ausdruck

$$\int e^{i\mathbf{s}\mathbf{r} - i\mathbf{s}'\mathbf{r}'} \{ \langle 00, 0 | U' U | 0, 00 \rangle - \langle 00, 0 | U' | 0, 00 \rangle^* \cdot \langle 00, 0 | U | 0, 00 \rangle \} dV_{r'} dV_r, \quad (\text{B.16})$$

wobei wir hier der besseren Übersicht wegen vorerst auf die Berechnung des thermischen Mittelwertes verzichten. Das abzuziehende Produkt ist ein Spezialfall von (B.15), womit der erste Term zu berechnen verbleibt. Mit Rücksicht auf (B.15) haben wir für diesen Term zunächst

$$\sum_{l,n} f_{0n}^{l*}(X_0^l; \mathbf{s}') f_{n0}^l(X_0^l; \mathbf{s}) \int \varphi_{00}^{l*}(u_l) e^{i(\mathbf{s}-\mathbf{s}')u_l} \varphi_{00}^l(u_l) dV_{u_l}. \quad (\text{B.17})$$

Es sei im folgendem der Kürze wegen

$$D_0^l(\mathbf{s}) = \int \varphi_{00}^{l*}(u_l) e^{i\mathbf{s}u_l} \varphi_{00}^l(u_l) dV_{u_l} \quad (\text{B.18})$$

gesetzt, dann hat man für die Kovarianz des Objektpotentials eine Gleichung der Form

$$\begin{aligned} & \sum_l f_{00}^{l*}(X_0^l; \mathbf{s}') f_{00}^l(X_0^l; \mathbf{s}) \times \{ D_0^l(\mathbf{s} - \mathbf{s}') - D_0^{l*}(\mathbf{s}') D_0^l(\mathbf{s}) \} + \\ & \sum_{l,n \neq 0} f_{0n}^{l*}(X_0^l; \mathbf{s}') f_{n0}^l(X_0^l; \mathbf{s}) \times D_0^l(\mathbf{s} - \mathbf{s}'). \end{aligned} \quad (\text{B.19})$$

Darin identifizieren wir in der ersten Zeile  $f_{00}^l$  mit der Elektronen-Streuamplitude des  $l$ -ten Atoms

$$f_{00}^l(X_0^l; \mathbf{s}) = \frac{4\pi\alpha}{s^2} e^{i\mathbf{s}X_0^l} \int |\Phi_0^l(X_0^l; x_l)|^2 \left\{ Z_l - \sum_{k=1}^{Z_l} e^{i\mathbf{s}x_{lk}} \right\} dV_{x_l}, \quad (\text{B.20})$$

multipliziert mit dem Phasenfaktor  $\exp(i\mathbf{s}X_0^l)$ . Dieser Phasenfaktor „verschiebt“ das Atom im FOURIER-Raum so, daß es sich im Ortsraum an der Stelle  $X_0^l$  befindet.<sup>2</sup>

Der „Debye-Faktor“  $D$  lautet mit Hilfe von Formel (G.18) für einen Oszillator im Grundzustand

$$D_0^l(\mathbf{s}) = e^{-u_l^2 s^2}, \quad (\text{B.21})$$

worin  $\sigma_l^2 = 2u_l^2$  gesetzt ist.  $\sigma$  ist darin die Standardabweichung für die Koordinaten eines Oszillators im Grundzustand.<sup>3</sup> Die Formel für die Berechnung von Mittelwerten von Exponentialfunktionen durch Kumulanten (4.31) ist eine andere Möglichkeit, diesen Faktor zu berechnen. Das Charakteristikum eine Gauss-Verteilung für die Koordinaten ist, daß bei ihr diese Entwicklung mit  $K_2$  abbricht, da einer Gauss-Verteilung allein durch die Angabe von Erwartungswert und Varianz bestimmt ist.

<sup>2</sup>Vgl. Kapitel 6.8 auf Seite 90.

<sup>3</sup>Man wird dieses skalare  $u$  wohl schwerlich mit dem Verschiebungsvektor aller Atome im Objekt  $u = X - X_0$  und auch nicht mit dem als Integrationsvariable benutzten Verschiebungsvektor  $u_l$  eines Atoms verwechseln. Der „Debye-Faktor“  $D(\mathbf{s}) = \exp(-u^2 s^2)$  wird auch als Temperaturfaktor bezeichnet [12]. Schreibt man darin das Argument  $u^2 s^2$  der Exponentialfunktion in der Form  $B(s/4\pi)^2$ , so ist der Koeffizient  $B = (4\pi u)^2 = 8\pi^2 \sigma^2$  der Debye-Waller Faktor in den *Internationalen Tabellen* [12][76]. Unser  $s$  ist ja der Impulsübertrag  $2k \sin(\vartheta/2)$  und  $k = 2\pi/\lambda$  bezeichnet hier den Betrag des Wellenvektors  $\mathbf{k}$ .

Der sich damit für den elastischen Anteil der Kovarianz  $\mu_{11}$  des Objektpotentials ergebende Ausdruck für ein Atom im Ursprung des Koordinatensystems ( $X_0^l = 0$ ) von der Form

$$\mu_{11}^{\text{TDS}}(\mathbf{s}, \mathbf{s}') = \left(\frac{2\pi}{k}\right)^2 f^{\text{B}}(\mathbf{s}) f^{\text{B}}(\mathbf{s}') \left[ e^{-u^2(\mathbf{s}-\mathbf{s}')^2} - e^{-u^2(\mathbf{s}^2+\mathbf{s}'^2)} \right] \quad (\text{B.22})$$

beschreibt die thermisch bedingte, diffuse Streuung (TDS) im Rahmen des sogenannten „Einstein-Modells“, also für ein Ensemble unabhängiger Atome. Insbesondere gibt es so keine Korrelationen der Atomvibrationen. Man wird bemerken, daß wir hier keine thermische Mittelung durchgeführt haben, um zu diesem Ergebnis zu gelangen. Man sieht auch, daß man dies schwerlich wird durchführen können, ohne Annahmen wie z. B.  $f_{nn}^l(X_0^l; \mathbf{s}) \mapsto f_{00}^l(X_0^l; \mathbf{s})$ , sodaß man den thermischen Mittelwert effektiv nur für den Kernanteil durchführt.

Bei dem Term in der zweiten Zeile der Gleichung (B.19) entfällt in den Matrixelementen  $f_{n0}^l$  nach Formel (B.14) für  $n \neq 0$  wegen der Orthogonalität der Zustandsfunktionen des Atoms der Anteil mit der Kernladungszahl  $Z_l$ . Man kann daher schreiben:

$$F_{n0}^l(X_0^l; \mathbf{s}) = \int \Phi_n^{l*}(X_0^l; x_l) \left\{ \sum_{k=1}^{Z_l} e^{i\mathbf{s}x_{kl}} \right\} \Phi_0^l(X_0^l; x_l) dV_{x_l} = \int \varrho_{n0}^l(X_0^l; \mathbf{r}) e^{i\mathbf{s}\mathbf{r}} dV_{\mathbf{r}} \quad (\text{B.23})$$

mit dem Matrixelement  $n, 0$  der Elektronenladungsdichte des  $l$ -ten Atoms in der Ruhelage  $X_0^l$

$$\varrho_{n0}^l(X_0^l; \mathbf{r}) = \int \Phi_n^{l*}(X_0^l; x_l) \left\{ \sum_{k=1}^{Z_l} \delta(\mathbf{r} - x_{lk}) \right\} \Phi_0^l(X_0^l; x_l) dV_x. \quad (\text{B.24})$$

Ein Ausdruck der Form

$$\sum_{n \neq 0} F_{0n}^*(\mathbf{s}') F_{n0}(\mathbf{s}) = \sum_n F_{0n}^*(\mathbf{s}') F_{n0}(\mathbf{s}) - F_{00}^*(\mathbf{s}') F_{00}(\mathbf{s}) \quad (\text{B.25})$$

ist daher, wenn wir die Vollständigkeitsrelation für die elektronischen Zustandsfunktionen verwenden, die bezüglich  $\mathbf{s}$  und  $\mathbf{s}'$  FOURIER-Transformierte Kovarianz der Elektronenladungsdichte des Atoms im Grundzustand

$$\int e^{i\mathbf{s}\mathbf{r} - i\mathbf{s}'\mathbf{r}'} \{ \langle 0 | \hat{\varrho}' \hat{\varrho} | 0 \rangle - \langle 0 | \hat{\varrho}' | 0 \rangle \langle 0 | \hat{\varrho} | 0 \rangle \} dV_{\mathbf{r}'} dV_{\mathbf{r}}. \quad (\text{B.26})$$

Die Buchstaben  $\hat{\varrho}, \hat{\varrho}'$  bezeichnen darin (reelle) Operatoren für die Ladungsdichte eines Atoms in der Ortsdarstellung:

$$\hat{\varrho} = \sum_{k=1}^Z \delta(\mathbf{r} - x_k), \quad \hat{\varrho}' = \sum_{k=1}^Z \delta(\mathbf{r}' - x_k). \quad (\text{B.27})$$

Dies ist analog zur Formel (B.16). Der Gebrauch der Vollständigkeitsrelation für die elektronischen Zustandsfunktionen ist in diesem Zusammenhang unbedenklich, da uns die Gleichung (B.16) ja direkt anweist, den Mittelwert der eingehenden Größen über den Grundzustand zu bilden, was wir hier im Hinblick auf die Formel (B.15) lediglich abgekürzt haben.<sup>4</sup>

<sup>4</sup>Zur Verwendung - oder sagen wir besser Nichtverwendung - der Vollständigkeitsrelation an dieser Stelle vergleiche man [77][60]. Bezüglich der Interpretation dieser Mittelung, insbesondere der thermischen Mittelung, über die verschiedenen  $\psi$ -Zustände vergleiche man in [72] den zweiten Absatz auf Seite 17.

Wenn man den Ausdruck (B.25) für unkorrelierte Atome auswertet (Produktansatz), dann bekommt man die Raman-Compton-Näherung [20] [78] [Wentzel in [50]] für die Kovarianz der Dichte der Elektronenladung des Atoms im Grundzustand

$$\frac{(4\pi\alpha)^2}{s^2 s'^2} e^{i(s-s')X_0^l} \sum_{k=1}^Z \left\{ \tilde{F}_k(s-s') - \tilde{F}_k^*(s') \tilde{F}_k(s) \right\}, \quad (\text{B.28})$$

worin die  $\tilde{F}_k$  die Formfaktoren der einzelnen Elektronen des Atoms sind. Da man diese aber nicht kennt, nimmt man weiter an, daß sich alle Elektronen in der gleichen effektiven Ladungsdichte bewegen. Das kann natürlich nur für Wasserstoff oder Helium der Fall sein. Nehmen wir dies zum Trotz aber an, dann sind alle  $\tilde{F}_k$  einander gleich. Setzen wir demnach also  $\tilde{F}_k = F/Z$ , dann schreibt sich damit der obige Ausdruck für ein Atom im Ursprung des Koordinatensystems ( $X_0^l = 0$ ) in der Form

$$\mu_{11}^{\text{in}}(s, s') = \left( \frac{4\pi\alpha_s}{\beta} \right)^2 \frac{F(s-s') - \frac{1}{Z} F^*(s') F(s)}{s^2 s'^2} e^{-u^2(s-s')^2}, \quad (\text{B.29})$$

und man setzt im folgenden für  $F$  einfach wieder den Formfaktor des Atoms ein, ungeachtet des Umstandes, daß dieser gewisse Korrelationen der Atomelektronen enthält.

Spätestens jetzt sieht man, daß dieser Ausdruck für  $s = s' = 0$  divergiert. Diese Divergenz wird durch die langreichweitige Coulomb-Wechselwirkung verursacht. Eine solche Divergenz tritt im allgemeinen auch bei der Elektronenstreuamplitude  $f$  in Gleichung (B.11) auf. Jedenfalls dann, wenn das Objekt bzw. das Atom nicht gerade kugelsymmetrisch ist. Der physikalische Grund für diese Divergenzen ist jedoch in beiden Fällen der gleiche, wenngleich dieser Punkt durch den glücklichen „Zufall“ der (angenommenen!) Kugelsymmetrie des Atoms bei der Elektronenstreuamplitude nicht augenfällig wird.

Der mathematische Grund für diese Divergenz ist einfach der, daß diese Ausdrücke in dieser Form sinnlos sind, bzw. nur symbolisch zu verstehen sind. Das hatten wir schon im Anhang (D) bei der Ableitung der Beziehungen (D.11) und (D.12) ausdrücklich so festgestellt.

Der physikalische Grund dafür, daß in realiter diese Divergenzen nicht auftreten, ist der, daß es ebene Wellen in realiter nicht gibt. Ebene Wellen sind eine rein mathematische Fiktion zwecks Abkürzung der Rechnung.

Die mathematische Darstellung eines Strahls mit großem, aber begrenztem Querschnitt durch eine einfache ebene Welle ist zwar bequem, birgt aber in sich die Gefahr mathematischer Inkonsistenzen. Z. B. setzt die Definition des Streuquerschnitts implizit voraus, daß der einlaufende Teilchenstrahl in seiner lateralen Ausdehnung begrenzt ist, sodaß er nicht mit der Streuwelle interferiert, d. h. , daß z. B. der elastische Wirkungsquerschnitt allein durch das Betragsquadrat der elastischen Streuamplitude bestimmt ist. Umgekehrt bedeutet das, daß man sich möglicherweise Divergenzen bei kleinen Streuwinkeln – also speziell bei Null – einhandelt, wenn man den einlaufenden Teilchenstrahl durch eine lateral unbegrenzte ebene Welle modelliert.

Der Zusammenhang der kleinen Streuwinkel mit dem großen, aber begrenzten Strahlquerschnitt wird klarer, wenn man das klassische Bild eines Streuexperiments heranzieht. Der hier die Streuung bestimmende Parameter ist der Stoßparameter und großen Stoßparametern – also Streuung in weitem Abstand vom Streuer – entsprechen kleine Streuwinkel. Dadurch daß wir den Strahl seitlich begrenzen, führen wir implizit einen maximalen Stoßparameter ein und vermeiden so (mögliche) Divergenzen des Wirkungsquerschnittes durch infinit viele infinitesimal kleine Streuwinkel.

Der Wert des Integrals (D.11), den wir oben in den Formeln (B.6) und (B.6) explizit benutzt

haben, ergibt sich nämlich mit Hilfe des Greenschen Satzes und der Ersetzung

$$\Delta u + s^2 u = 0 \quad \xrightarrow{s^2 \neq 0} \quad u = -\frac{1}{s^2} \Delta u \quad \text{für} \quad u = e^{is\rho}$$

samt Überwälzen des Laplace-Operators auf das  $1/r$  Potential. Diese Ersetzung ist daher wegen  $s^2 = (2k \sin \vartheta/2)^2$  für den Streuwinkel  $\vartheta = 0$  unzulässig, da die Ausgangsgleichung linker Hand identisch verschwindet. Es sollte einen von daher also auch nicht weiter verwundern, wenn man durch diese Art der Rechnung (scheinbar) sinnlose Resultate erhält.

Der in [27][28][90] beschrittene Ausweg, in (B.29) einfach statt des 2-dimensionalen Impulsübertrages  $s$  den 3-dimensionalen Impulsübertrag  $\mathbf{q} = -k\Theta_E \mathbf{e}_z + s$  einzusetzen, worin  $\hbar k\Theta_E$  der minimal mögliche Impulsübertrag in Vorwärtsrichtung für einen Energieverlust  $E$  bedeutet<sup>5</sup>, ist im Lichte dieser Herleitung als streng verboten erwiesen. Wir haben ja in der Hoch-Energie-Näherung die Projektion des Potentials bezüglich der  $z$ - oder Strahlachse zu berechnen und nicht deren FOURIER-Transformierte. Man kann also z. B. in Formel (B.3) nicht einfach hergehen, und in dem Integral bezüglich der  $z$ -Koordinate einen Faktor  $\exp(-ik\Theta_E z)$  einfügen wollen. Andererseits bekommt man genau diese Projektion, wenn man in dem mit den 3-dimensionalen Impulsüberträgen  $\mathbf{q}, \mathbf{q}'$  berechneten Ausdruck bei den Impulskoordinaten überall die  $z$ -Komponente wegläßt.<sup>6</sup> Dies ist ferner nur eine andere Formulierung der Ausgangsprämisse, bei dem zu entwickelnden Multislice-Verfahren für die inelastische Streuung in der Rechnung den Energieverlust des Elektrons im Objekt komplett zu vernachlässigen. Diese *conditio sine qua non* des Verfahrens ermöglicht es in der Folge auch für die anschließende elastische Propagation des Elektrons durch das Objekt denselben Satz von elastischen Transmissionsfunktionen (mit Absorption in jedem Scheibchen) zu verwenden wie vor der inelastischen Wechselwirkung.

Da aber eine Auswertung der Bestimmungsgleichungen für den Erwartungswert und die Varianz des Objektpotentials für eine einfallende, bündelbegrenzte Welle wohl schwierig wäre und jedenfalls bislang auch nicht versucht wurde, behelfen wir uns bisweilen damit im Nenner der Beziehung (B.29), die ohnehin bloß eine grobe Näherung darstellt,  $s$  durch  $\mathbf{q} = -k\Theta_E \mathbf{e}_z + s$  mit einem willkürlichen, aber weder zu großen noch zu kleinen Wert für  $\Theta_E$  zu ersetzen. Daran aber, daß man dies nicht auch im Zähler darf, sollte nach dem Vorstehenden keine Unklarheit mehr bestehen. Darüber läßt auch die quasi experimentelle Überprüfung keinen Zweifel, steigt doch bei Mißachtung dieses Punktes die Gesamtintensität im ungefilterten Beugungsbild zunächst immer mehr über den Sollwert 1 an - auf bis zu 25% - bevor sie aufgrund der Tatsache, daß aus rechnerischen Gründen nur inelastische Einfachstreuung (und elastische Vielfachstreuung) berücksichtigt werden kann, wieder fällt.

## Eine mögliche Verallgemeinerung

Wenn wir den Ausdruck (B.9) in der Form

$$-\int e^{isr} \langle nm, n | U | 0, 00 \rangle dV_r = \frac{4\pi\alpha}{s^2} \int \varrho_{nm,00}(X; \mathbf{r}) e^{isr} dV_r \quad (\text{B.30})$$

<sup>5</sup>Vgl. Anhang A.

<sup>6</sup>Beim Vergleich der Ergebnisse in [27][28][90] mit dem obigen Ausdruck (B.19) fällt weiterhin auf, daß dort beim inelastischen Anteil für die Kovarianz des projizierten Objektpotentials der Debye'sche Temperaturfaktor fehlt.

schreiben, worin

$$\varrho_{nm,00}(X; \mathbf{r}) = \langle nm, n | \sum_l \left\{ Z_l \delta(\mathbf{r} - X_l) \delta_{n0} - \sum_{k=1}^{Z_l} \delta(\mathbf{r} - (X_l + x_{lk})) \right\} | 00, 0 \rangle \quad (\text{B.31})$$

bedeutet, dann könnten wir die Gleichung (B.19) in harmonischer Näherung durch das Matrixelement der Ladungsdichte des Objektes ausdrücken, worin wie in (B.19) der elektronische Anteil von dem Schwingungsanteil separiert wäre. Davon könnte man zumindest den elastischen Anteil  $\varrho_{00,00}(X_0; \mathbf{r}) = \varrho_0(\mathbf{r})$  für den Grundzustand des Objektes mit Hilfe der Dichte-Funktionaltheorie bestimmen [101]. Das würde ausreichen, um damit die elastische und die thermisch bedingte diffuse Streuung im Rahmen der Hoch-Energie-Näherung zu beschreiben. Wir würden nämlich für den TDS-Anteil, respektive für den durch die Kernbewegung verursachten inkohärenten Anteil der elastischen Streuungstrahlung

$$\varrho_0^*(\mathbf{s}') \varrho_0(\mathbf{s}) \{ D_0(\mathbf{s}, \mathbf{s}') - D_0^*(\mathbf{s}') D_0(\mathbf{s}) \} \quad (\text{B.32})$$

erhalten. Darin haben wir mit  $D_0(\mathbf{s}, \mathbf{s}')$  die Gleichung gleich auch auf den Fall der nicht unabhängig voneinander schwingenden Atome verallgemeinert, sodaß sich jetzt auch  $D_0(\mathbf{s})$  auf die Gesamtheit der Kerne bezieht. Möglicherweise würde sich auch der Ausdruck (B.26) damit berechnen lassen, sodaß man für den inelastischen Anteil, respektive den inkohärenten Anteil der Streustrahlung, der von der Elektronenhülle herrührt, das Analogon

$$\{ \tilde{\varrho}_0(\mathbf{s}, \mathbf{s}') - \tilde{\varrho}_0^*(\mathbf{s}') \tilde{\varrho}_0(\mathbf{s}) \} D_0(\mathbf{s}, \mathbf{s}') \quad (\text{B.33})$$

bekommt, worin in  $\tilde{\varrho}$  der von den Kernen herrührende Teil der Ladungsdichte wegzulassen ist. Hierbei ist es aber zweifelhaft, ob sich davon auch eine Zerlegung in eine hinreichend schnell konvergierende Summe von 2-dimensionalen Produkttermen gewinnen läßt.

### **Zusatz: Die bislang angewandte Methode die Kenngrößen der thermisch diffusen Streuung zu berechnen.**

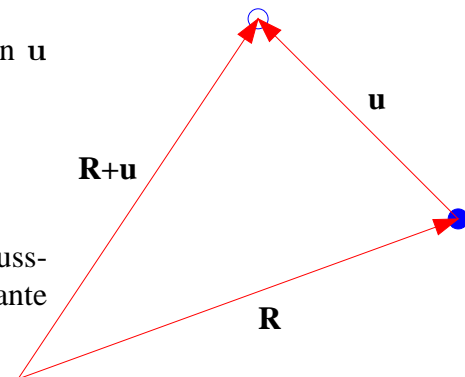
Anstatt die benötigten Mittelwerte für einen Festkörper auszurechnen, hat man bislang diese Mittelwerte immer erst nur für ein Atom berechnet [28][90][91]. Ich gebe hier exemplarisch eine von mir schon quantenmechanisch angehauchte Version dieser Berechnungsweise für den Erwartungswert  $\bar{\chi}(\boldsymbol{\rho})$  der Phasenschiebung  $\chi(\boldsymbol{\rho})$  im Falle der thermisch bedingten, diffusen Streuung.

Der „thermische“ Erwartungswert der Phasenschiebung wird nach dem folgendem Rezept berechnet:

Der Mittelwert einer Funktion  $h$  über die Verschiebungen  $\mathbf{u}$  vom Ursprung  $\mathbf{R}$  ist gegeben durch

$$\langle h(\boldsymbol{\rho} - \mathbf{R}(\mathbf{u})) \rangle_u = \int |\varphi_0(\mathbf{u})|^2 h(\boldsymbol{\rho} - (\mathbf{R} + \mathbf{u})) d\mathbf{u}.$$

Da die Oszillator Grundzustandsfunktion  $\varphi_0$  eine Gauss-Funktion ist, ist die einzig nicht verschwindende Kumulante in diesem Fall  $K_2$ .





Als Faltungsintegral rechnet man dies am bequemsten im FOURIER-Raum aus. Wenn man dann hier für  $h(\mathbf{s})$  die Fourier-Transformierte des elektronischen Erwartungswertes der elastischen Phasenschiebung eines Atoms  $\bar{\chi}(\mathbf{s}) = \lambda f(\mathbf{s})$  einsetzt, bekommt man sofort das Ergebnis

$$\bar{\chi}^{\text{TDS}}(\mathbf{s}) = \hat{\mathcal{F}}\langle\bar{\chi}(\boldsymbol{\rho})\rangle_u = \lambda f(\mathbf{s}) e^{-u^2 \mathbf{s}^2} . \quad (\text{B.34})$$

Man meint hierbei die Atome als Ganzes förmlich vibrieren zu sehen.

Bei dieser bislang üblichen Art der Rechnung kann man natürlich nur schwerlich den fundamentalen Unterschied der adiabatischen und der harmonischen Mittelung bei einem Festkörper erkennen.



# Anhang C

## Eigenschaften der Bornschen- & der Hochenergie Streuamplitude

### C.1 Friedelsymmetrie

Die Friedel'sche Regel besagt, daß die Intensität des Beugungsbildes an diagonal gegenüberliegenden Punkten gleich ist:  $I(\mathbf{s}) = I(-\mathbf{s})$ . Diese von G. Friedel 1913 für Röntgenstrahlung aufgestellte Regel gilt dort auch nur in den Bereichen, in denen keine anormale Streuung auftritt.<sup>1</sup>

Nach Formel (6.44) auf Seite 90 war die Phasenmatrix  $P$  definiert als

$$P(\mathbf{s}) = \hat{\mathcal{F}} \sum_l \delta(\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}_l) = \sum_l \exp(i\mathbf{s}\boldsymbol{\rho}_l) , \quad (\text{C.1})$$

worin die Summe über alle Atome  $l$  der Superzelle läuft.

Im folgenden werden **nur** die elastischen Streuamplituden für ein Scheibchen betrachtet. Das entspricht den Verhältnissen in der Eikonalnäherung von Molière [88] bzw. der Glauberschen Hochenergie-Näherung [45][70].

Für die kinematische Streuamplitude  $F^B(\mathbf{s})$  eines Objektes gilt<sup>2</sup>

$$F^B(\mathbf{s}) = f^B(\mathbf{s}) \cdot P(\mathbf{s}) \quad (\text{C.2})$$

mit der Bornschen Streuamplitude  $f^B(\mathbf{s})$ . Dabei wird hier o. B. d. A. angenommen, daß das Objekt nur aus einer Atomsorte besteht.<sup>3</sup>

Da für die reelle Bornsche Streuamplitude  $f^B(-\mathbf{s}) = f^B(\mathbf{s})$  gilt, ergibt sich für die kinematische Streuamplitude

$$\{F^B(\mathbf{s})\}^* = f^B(\mathbf{s}) \cdot P(-\mathbf{s}) = F^B(-\mathbf{s}) , \quad (\text{C.3})$$

---

<sup>1</sup>Vgl. dazu die Fußnote 1 im Anhang B auf Seite 111. bzw. [75][76].

<sup>2</sup>Gemäß dem Sprachgebrauch in Fußnote 12 auf Seite 20 wäre dies die kinematische Streuamplitude in Bornscher Näherung. Würde man darin die Bornsche Streuamplitude durch die exakte Streuamplitude eines Atoms ersetzen, käme man zur sogenannten Pseudo-Kinematischen Streuamplitude des Objektes [57][58][21]. Eine auf der Unitaritätsrelation (2.46) für die elastische Streuung beruhende Approximation der exakten Streuamplitude eines Atoms durch die zweite Bornsche Näherung wird in [44] beschrieben.

<sup>3</sup>Bei mehreren Atomsorten könnten wir uns z. B.  $f^B$  und  $P$  als Vektoren vorstellen, deren Komponenten den einzelnen Atomsorten entsprechen. Die Punktmultiplikation beider ist dann ein Skalarprodukt. Das Quadrat  $|F^B(\mathbf{s})|^2$  wird als Strukturfaktor, die Streuamplitude  $F^B(\mathbf{s})$  als Strukturamplitude bezeichnet, wenn die Summe über alle Atome in der Phasenmatrix  $P(\mathbf{s})$  nur über die Einheitszelle läuft.

sodaß man hat:

$$\frac{1}{2i} \{F^B(\mathbf{s}) - F^{B*}(-\mathbf{s})\} = 0, \quad \frac{1}{2} \{F^B(\mathbf{s}) + F^{B*}(-\mathbf{s})\} = F^B(\mathbf{s}). \quad (\text{C.4})$$

- **Die elastische kinematische Streuamplitude erfüllt die Friedelsymmetrie.**

Für die Streuamplitude in Hochenergie-Näherung gilt der Zusammenhang (4.8)

$$f(\mathbf{s}) = -\frac{i}{\lambda} \int \{e^{i\chi(\boldsymbol{\rho})} - 1\} e^{i\mathbf{s}\boldsymbol{\rho}} df_{\boldsymbol{\rho}} = -\frac{i}{\lambda} \hat{\mathcal{F}} \{S(\boldsymbol{\rho}) - 1\} = \hat{\mathcal{F}} f(\boldsymbol{\rho}), \quad (\text{C.5})$$

worin sich die elastische Phasenschiebung  $\chi(\boldsymbol{\rho})$  aus der kinematischen Streuamplitude gemäß der Beziehung (4.19)

$$\chi(\boldsymbol{\rho}) = \lambda \int e^{-i\mathbf{s}\boldsymbol{\rho}} F^B(\mathbf{s}) \frac{df_{\mathbf{s}}}{(2\pi)^2} = \lambda \hat{\mathcal{F}}^{-1} F^B \quad (\text{C.6})$$

berechnet, und wir eine Streuamplitude im Ortsraum gemäß

$$f(\boldsymbol{\rho}) = -\frac{i}{\lambda} \{S(\boldsymbol{\rho}) - 1\}, \quad S(\boldsymbol{\rho}) = e^{i\chi(\boldsymbol{\rho})} \quad (\text{C.7})$$

eingeführt haben. Für die Phasenschiebung  $\chi$  gilt dabei:

$$\chi^*(\boldsymbol{\rho}) = \lambda \int e^{-i(-\mathbf{s})\boldsymbol{\rho}} \{F^B(\mathbf{s})\}^* \frac{df_{\mathbf{s}}}{(2\pi)^2} = \chi(\boldsymbol{\rho}). \quad (\text{C.8})$$

Die elastische Phasenschiebung ist eine reelle Funktion.

Damit lauten die symmetrischen Imaginär- & Realteile der Hochenergie Streuamplitude

$$\begin{aligned} \frac{1}{2i} \{f(\mathbf{s}) - f^*(-\mathbf{s})\} &= \frac{1}{2\lambda} \int e^{i\mathbf{s}\boldsymbol{\rho}} \{-(e^{i\chi(\boldsymbol{\rho})} - 1) - (e^{-i\chi(\boldsymbol{\rho})} - 1)\} df_{\boldsymbol{\rho}} \\ &= \frac{1}{\lambda} \int e^{i\mathbf{s}\boldsymbol{\rho}} \{1 - \cos \chi(\boldsymbol{\rho})\} df_{\boldsymbol{\rho}}, \end{aligned} \quad (\text{C.9})$$

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} \{f(\mathbf{s}) + f^*(-\mathbf{s})\} &= \frac{1}{2i\lambda} \int e^{i\mathbf{s}\boldsymbol{\rho}} \{(e^{i\chi(\boldsymbol{\rho})} - 1) - (e^{-i\chi(\boldsymbol{\rho})} - 1)\} df_{\boldsymbol{\rho}} \\ &= \frac{1}{\lambda} \int e^{i\mathbf{s}\boldsymbol{\rho}} \sin \chi(\boldsymbol{\rho}) df_{\boldsymbol{\rho}}. \end{aligned} \quad (\text{C.10})$$

- **Die elastische Streuamplitude in Hochenergie-Näherung hat keine Friedelsymmetrie.**

Wenn man die transzendenten Funktionen in eine Potenzreihe entwickelt, so findet man in erster nicht verschwindender Ordnung<sup>4</sup> (Pseudokinematische Näherung nach Glauber und Shomaker [44])

$$\frac{1}{2} \{f(\mathbf{s}) + f^*(-\mathbf{s})\} \rightarrow \hat{\mathcal{F}} \left( \hat{\mathcal{F}}^{-1} F^B \right) = F^B(\mathbf{s}) \quad (\text{C.11})$$

<sup>4</sup>angelegentlich beachte man, daß in der Hochenergie Näherung  $df_{\mathbf{s}} = s ds d\varphi$ ,  $d\Omega = 2\pi s ds / k^2$  gilt, wo  $d\Omega$  das Raumwinkelement und  $k = 2\pi/\lambda$  den Betrag des  $k$ -Vektors bedeutet.

und

$$\frac{1}{2i} \{f(\mathbf{s}) - f^*(-\mathbf{s})\} \rightarrow \frac{\lambda}{2} \hat{\mathcal{F}} \left( \left\{ \hat{\mathcal{F}}^{-1} F^B \right\} \cdot \left\{ \hat{\mathcal{F}}^{-1} F^B \right\} \right) = \frac{\lambda}{2} \int F^B(\mathbf{x}) F^B(\mathbf{s} - \mathbf{x}) \frac{df_x}{(2\pi)^2}. \quad (\text{C.12})$$

Dieser Imaginärteil der Streuamplitude ist nicht Folge irgendeiner Absorption, sondern beschreibt die für das Bestehen der Unitaritätsrelation (2.46) notwendige Extinktion des Primärstrahls.

Die Streuamplitude in in der Pseudokinematischen Näherung nach Glauber und Shomaker lautet also:

$$f(\mathbf{s}) = F^B(\mathbf{s}) + \frac{i\lambda}{2} \int F^B(\mathbf{x}) F^B(\mathbf{s} - \mathbf{x}) \frac{df_x}{(2\pi)^2} + \text{etc.} \quad (\text{C.13})$$

## C.2 Optisches Theorem & Unitaritätsbedingung

Gemäß dem optischen Theorem (2.47) muß der Imaginärteil der elastischen Vorwärtsstreuamplitude mit der doppelten Wellenlänge  $\lambda$  multipliziert gleich dem totalen Wirkungsquerschnitt sein. Nun ist hier mit Rücksicht auf (C.5)

$$\sigma_t = 2\lambda \Im f(\mathbf{s} = 0) = 2 \int (1 - \Re S(\boldsymbol{\rho})) df_\rho. \quad (\text{C.14})$$

Darin ist  $\Re S(\boldsymbol{\rho}) = \cos \chi(\boldsymbol{\rho})$ , sodaß dieser Ausdruck mit dem Wert aus Gleichung (C.9) für  $\mathbf{s} = 0$  zusammenfällt.

Für den elastischen Wirkungsquerschnitt bekommen wir hier den Ausdruck

$$\sigma_e = \int |f(\mathbf{s})|^2 \frac{df_s}{k^2} = \int |S(\boldsymbol{\rho}) - 1|^2 df_\rho. \quad (\text{C.15})$$

Der inelastische Wirkungsquerschnitt ist dann per Definition

$$\sigma_i := \sigma_t - \sigma_e = \int (1 - |S(\boldsymbol{\rho})|^2) df_\rho. \quad (\text{C.16})$$

Auch hieran ist wieder ersichtlich, daß es zwar elastische Streuung ohne Vorhandensein von inelastischer Streuung geben kann, nicht aber umgekehrt.

Bilden wir zur Prüfung der *Unitaritätsbedingung* für die elastische Streuamplitude (2.46) das Integral<sup>5</sup>

$$g(\mathbf{s}) = \frac{1}{2\lambda} \int f(\mathbf{x} + \mathbf{s}) f^*(\mathbf{x}) \frac{df_x}{k^2}, \quad (\text{C.17})$$

so wird darin mit Hilfe der Vollständigkeitsrelation für die ebenen Wellen (D.10)

$$\begin{aligned} & \int \frac{df_x}{k^2} \left\{ \int \{S(\boldsymbol{\rho}') - 1\} e^{i(\mathbf{x}+\mathbf{s})\boldsymbol{\rho}'} df_{\rho'} \right\} \left\{ \int \{S(\boldsymbol{\rho}) - 1\} e^{i\mathbf{x}\boldsymbol{\rho}} df_\rho \right\}^* = \\ & \frac{(2\pi)^2}{k^2} \iint e^{i\mathbf{s}\boldsymbol{\rho}'} \delta(\boldsymbol{\rho} - \boldsymbol{\rho}') \{S(\boldsymbol{\rho}') - 1\} \{S(\boldsymbol{\rho}) - 1\}^* df_{\rho'} df_\rho = \\ & \lambda^2 \int e^{i\mathbf{s}\boldsymbol{\rho}} \{|S(\boldsymbol{\rho})|^2 - S(\boldsymbol{\rho}) - S^*(\boldsymbol{\rho}) + 1\} df_\rho. \end{aligned}$$

<sup>5</sup>Es sollte ja in der Hochenergie-Näherung der Impuls nach der Streuung  $\mathbf{k}'$  gleich  $\mathbf{k} + \mathbf{s}$  sein. Ferner ist unsere gegenwärtig andere Vorzeichenkonvention für die FOURIER-Transformation zu beachten.

Bei der Ableitung der Gleichung (C.9) hatten wir rein elastische Streuung unterstellt, sodaß, um in Übereinstimmung damit zu bleiben, hierin  $|S(\boldsymbol{\rho})|^2 = 1$  ist. Damit finden wir für  $g(\mathbf{s})$  den Ausdruck

$$g(\mathbf{s}) = \frac{1}{\lambda} \int e^{i\mathbf{s}\boldsymbol{\rho}} \{1 - \cos \chi(\boldsymbol{\rho})\} d\mathbf{f}_\rho, \quad (\text{C.18})$$

in Übereinstimmung mit dem Ergebnis in (C.9).

- **Die Streuamplitude in Hochenergie-Näherung erfüllt die Unitaritätsbedingung**

### C.3 Diffraktogramm & Pattersonfunktion

Das *Diffraktogramm*  $\mathcal{D}(\mathbf{s})$  ist definiert als die FOURIER-Transformierte der Bildintensität. Entsprechend ist die *Pattersonfunktion*  $\mathcal{P}(\mathbf{s})$  als die FOURIER-Transformierte der Beugungsbildintensität definiert. Wenn wir im Rahmen der Molière'schen Eikonalnäherung [88] bzw. der Glauber'schen Hochenergie-Näherung [45] das ganze Objekt nur durch eine einzige Transmissionsfunktion  $T(\boldsymbol{\rho}) = S(\boldsymbol{\rho})$  beschreiben, dann bekommen wir für das *Diffraktogramm* und die *Pattersonfunktion* die folgenden Ergebnisse: Mit der Welle hinter dem Objekt in der Form

$$\begin{aligned} \psi(\boldsymbol{\rho}) &= S(\boldsymbol{\rho}) = 1 + i\lambda f(\boldsymbol{\rho}) \\ \psi(\mathbf{s}) &= S(\mathbf{s}) = (2\pi)^2 \delta(\mathbf{s}) + i\lambda f(\mathbf{s}) \end{aligned}$$

gelten die Eigenschaften<sup>6</sup>

$$|\psi(\boldsymbol{\rho})|^2 = 1 + i\lambda \{f(\boldsymbol{\rho}) - f^*(\boldsymbol{\rho})\} + |\lambda f(\boldsymbol{\rho})|^2, \quad \frac{1}{f_\infty} \int |\psi(\boldsymbol{\rho})|^2 d\mathbf{f}_\rho = 1 - \frac{\sigma_i}{f_\infty} \leq 1,$$

$$\sigma_e = \int |\lambda f(\boldsymbol{\rho})|^2 d\mathbf{f}_\rho = \left\{ (2\pi)^2 \hat{\mathcal{F}} \left| \lambda \hat{\mathcal{F}}^{-1} f(\mathbf{s}) \right|^2 \right\}_{s=0} = \int |f(\mathbf{s})|^2 \frac{d\mathbf{f}_s}{k^2},$$

$$\left| \frac{\psi(\mathbf{s})}{2\pi} \right|^2 = |\delta(\mathbf{s})|^2 - 2\lambda \Im f(\mathbf{s}) \delta(\mathbf{s}) + \left| \frac{f(\mathbf{s})}{k} \right|^2, \quad \frac{1}{f_\infty} \int |\psi(\mathbf{s})|^2 \frac{d\mathbf{f}_s}{(2\pi)^2} = 1 - \frac{\sigma_i}{f_\infty} \leq 1.$$

- *Pattersonfunktion*

$$\mathcal{P}(\mathbf{s}) = |\psi(\mathbf{s})|^2, \quad \mathcal{P}(\boldsymbol{\rho}) = \hat{\mathcal{F}}^{-1} \mathcal{P}(\mathbf{s}), \quad \mathcal{P}(-\boldsymbol{\rho}) = \mathcal{P}^*(\boldsymbol{\rho}),$$

$$\mathcal{P}(\boldsymbol{\rho}) = \int \psi(\mathbf{v} + \boldsymbol{\rho}) \psi^*(\mathbf{v}) d\mathbf{f}_v = \int \psi(\mathbf{v}) \psi^*(\boldsymbol{\rho} - \mathbf{v}) d\mathbf{f}_v.$$

Einige Eigenschaften:

$$\mathcal{P}(\boldsymbol{\rho}) = f_\infty - \sigma_t + \lambda^2 \int f(\mathbf{v} + \boldsymbol{\rho}) f^*(\mathbf{v}) d\mathbf{f}_v, \quad \mathcal{P}(\boldsymbol{\rho} = 0) = f_\infty - \sigma_i,$$

<sup>6</sup>Darin gilt überall:  $f_\infty = \infty$  &  $1/f_\infty = 0$ .

Im diskreten Fall ist mit  $N = N_x \cdot N_y$  &  $f_\infty = f_{ez}$ , worin  $f_{ez}$  die Fläche der Einheitszelle bedeutet. Damit hat man für die Flächenelemente:  $\Delta f_\rho = f_{ez}/N$ ,  $\Delta f_s = (2\pi)^2/\Delta f_\rho$ .

$$\int \mathcal{P}(\boldsymbol{\rho}) df_{\boldsymbol{\rho}} = f_{\infty}^2 - \sigma_t f_{\infty} + \lambda^2 |f(\mathbf{s} = 0)|^2 = \mathcal{P}(\mathbf{s} = 0) .$$

• *Diffraktogramm*

$$\mathcal{D}(\boldsymbol{\rho}) = |\psi(\boldsymbol{\rho})|^2, \quad \mathcal{D}(\mathbf{s}) = \hat{\mathcal{F}}\mathcal{D}(\boldsymbol{\rho}), \quad \mathcal{D}(-\mathbf{s}) = \mathcal{D}^*(\mathbf{s}),$$

$$\mathcal{D}(\mathbf{s}) = \int \psi(\mathbf{v} + \mathbf{s}) \psi^*(\mathbf{v}) \frac{df_v}{(2\pi)^2} = \int \psi(\mathbf{v}) \psi^*(\mathbf{s} - \mathbf{v}) \frac{df_v}{(2\pi)^2} .$$

Eine Eigenschaft:

$$\mathcal{D}(\mathbf{s}) = (2\pi)^2 f_{\infty} + \lambda^2 \int f(\mathbf{v}) f^*(\mathbf{s} - \mathbf{v}) \frac{df_v}{(2\pi)^2} + (2\pi)^2 i\lambda \{f(\mathbf{s}) - f^*(-\mathbf{s})\} .$$

Mit letzterem haben wir eine andere Fassung der Unitaritätsbedingung für die Streuamplitude bekommen, da ja – ohne Blenden – die Intensität des *Diffraktogramms* gleich der Intensität der *Pattersonfunktion* sein muß. Das ergibt

$$\frac{1}{2i} \{f(\mathbf{s}) - f^*(-\mathbf{s})\} = \lambda \int f(\mathbf{v}) f^*(\mathbf{s} - \mathbf{v}) \frac{df_v}{(2\pi)^2} .$$





## Anhang D

### Einige Eigenschaften Greenscher Funktionen

Es sei zur Aufgabe gestellt, eine Lösung der inhomogenen Eigenwertgleichung

$$[\Delta + k^2 - V(\mathbf{r})] \psi(\mathbf{r}) = f(\mathbf{r}) \quad (\text{D.1})$$

zu finden. Dabei seien die Eigenfunktionen  $\psi_n$  der zugehörigen homogenen Gleichung

$$[\Delta + k_n^2 - V(\mathbf{r})] \psi_n(\mathbf{r}) = 0 \quad (\text{D.2})$$

bereits bekannt. Sie mögen ferner ein VONS<sup>1</sup> bilden.

Die partikuläre Lösung der inhomogenen Eigenwertgleichung (D.1) kann dann allgemein mit Hilfe der Methode der Greenschen Funktion gefunden werden [[62], Kap. 3.12, 6.6], [[118], §§27,28]. Die Greensche Funktion erfüllt für alle  $\mathbf{r} \neq \mathbf{r}'$  die homogene Eigengleichung (D.2) und hat am Punkt  $\mathbf{r} = \mathbf{r}'$  einen Pol der Quellstärke 1. Formal schreibt man dies in der Form

$$[\Delta + k^2 - V(\mathbf{r})] G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = -\delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \quad (\text{D.3})$$

an. Darin gehört  $k^2$  im allgemeinen nicht zu den Eigenwerten  $k_n^2$ . Zum Zwecke der Lösung dieser Gleichung setzt man die gesuchte Greensche Funktion als Reihenentwicklung nach dem VONS der Eigenfunktionen der homogenen Gleichung

$$G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \sum_n c_n(\mathbf{r}') \psi_n(\mathbf{r}) \quad \text{bzw.} \quad G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \int c_n(\mathbf{r}') \psi_n(\mathbf{r}) dV_n \quad (\text{D.4})$$

an. Einsetzen in (D.3), Multiplikation mit  $\psi_n^*(\mathbf{r})$  und Integration über  $dV_r$  ergibt, mit Rücksicht auf (D.2) für die Entwicklungskoeffizienten

$$c_n(\mathbf{r}') = \frac{\psi_n^*(\mathbf{r}')}{k_n^2 - k^2}. \quad (\text{D.5})$$

Damit lautet die Entwicklung der Greenschen Funktion nach dem VONS der  $\psi_n$

$$G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \sum_n \frac{\psi_n^*(\mathbf{r}') \psi_n(\mathbf{r})}{k_n^2 - k^2}, \quad (\text{D.6})$$

---

<sup>1</sup>Siehe Fußnote 1 auf der Seite 24.

wobei im Falle eines kontinuierlichen Spektrums von Eigenwerten anstelle der Summe über  $n$  ein Integral tritt. Die so konstruierte Greensche Funktion erfüllt dann dieselben Randbedingungen wie die Lösungen  $\psi_n$  der homogenen Gleichung.

Die partikuläre Lösung der inhomogenen Gleichung (D.1) kann dann mit Hilfe der Greenschen Funktion in der Form

$$\psi(\mathbf{r}) = \int G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') f(\mathbf{r}') dV_{r'} \quad (\text{D.7})$$

geschrieben werden. Zu dieser partikulären Lösung kann noch eine Lösung der homogenen Eigenwertgleichung hinzutreten.

Im Spezialfall der Poissonschen Gleichung für den freien unbegrenzten Raum, ohne physikalisch vorgegebene Ränder sind die Eigenfunktionen der Eigenwertgleichung

$$[\Delta + k^2] \psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = 0 \quad (\text{D.8})$$

zu den kontinuierlichen Eigenwerten  $k_n^2 \equiv k^2$  einfach ebene Wellen

$$\psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = \sqrt{\frac{1}{(2\pi)^3}} e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}}. \quad (\text{D.9})$$

Sie erfüllen die notwendigen Bedingungen der Orthonormalität und der Vollständigkeit<sup>2</sup>

$$\int \psi_{\mathbf{k}'}^*(\mathbf{r}) \psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) dV_r = \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}'), \quad \int \psi_{\mathbf{k}}^*(\mathbf{r}') \psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) dV_k = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \quad (\text{D.10})$$

für ein VONS. Da eine Lösung der inhomogenen Gleichung für den unbegrenzten Raum gesucht ist, sind der Eigenwert  $k$  und die Funktion  $V(\mathbf{r})$  in (D.3) gleich 0 zu setzen, was für die Greensche Funktion in diesem Fall ergibt:

$$G_0(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \int \frac{e^{i\mathbf{k}(\mathbf{r}-\mathbf{r}')}}{k^2} \frac{dV_k}{(2\pi)^3} = \frac{1}{4\pi} \frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}, \quad (\text{D.11})$$

worin das Integral nur dann Sinn macht, wenn man es in (D.7) einsetzt und die Integrationsreihenfolge vertauscht. Multiplizieren wir beide Seiten mit  $\exp(-i\mathbf{q}\mathbf{R})$ , worin  $\mathbf{R} = \mathbf{r} - \mathbf{r}'$  und integrieren über  $V_R$ , so ergibt sich mit Rücksicht auf (D.10)

$$\frac{1}{4\pi} \int \frac{\exp(-i\mathbf{q}\mathbf{R})}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} dV_R = \frac{1}{q^2}. \quad (\text{D.12})$$

Daß sich auch dieser Integralwert selbstredend nur symbolisch versteht, liegt auf der Hand. Das Integral ist schließlich divergent. Es hat daher für sich keinen Sinn. Sinn macht dieses Ergebnis nur dann, wenn man es in einen solchen zu integrierenden Ausdruck einsetzt, von dem feststeht, daß er einen endlichen Integralwert hat und darin die Integrationsreihenfolge vertauscht.

Die Greensche Funktion erfüllt ferner den Reziprozitätssatz

$$G_0^*(Q, P) = G_0(P, Q) \quad (\text{D.13})$$

---

<sup>2</sup>Von daher hat man:

$$\int e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\mathbf{r}} dV_r = (2\pi)^3 \delta(\mathbf{k} - \mathbf{k}'), \quad \int e^{-i(\mathbf{r}'-\mathbf{r})\mathbf{k}} \frac{dV_k}{(2\pi)^3} = \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}').$$

bei Vertauschung von Quellpunkt  $Q$  und Aufpunkt  $P$ .

Betrachten wir die Wellengleichung für ein freies, nichtrelativistisches Teilchen der Energie  $E$  und des Impulses  $\hbar k$ , so ist

$$\left[ \Delta + i \frac{2m}{\hbar} \partial_t \right] \psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \exp \left( -i \frac{E}{\hbar} t \right) = 0 .$$

Die Wellenfunktion eines freien, nichtrelativistischen Teilchens erfüllt also wegen  $(\hbar \mathbf{k})^2 = 2mE$  die Eigenwertgleichung (D.8). Das gleiche gilt auch für die Wellengleichung eines freien, relativistischen Teilchens, denn die iterierten Dirac-Gleichung lautet hier

$$\left[ \Delta + (E^2 - (mc^2)^2) / (\hbar c)^2 \right] \psi_{\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = 0 .$$

Darin ist nun die Differenz zwischen dem Quadrat der relativistischen Gesamtenergie  $E^2$  und dem Quadrat der Ruhenergie gleich dem Quadrat der relativistischen Impulsenergie:

$$E^2 - (mc^2)^2 = (\mathbf{p}c)^2 .$$

# Anhang E

## Anmerkungen zur effizienten Implementierung des Multislice-Verfahrens

One of the problems of being a pioneer is you always make mistakes and I never, never want to be a pioneer. It's always best to come second when you can look at the mistakes the pioneers made.

Seymour Cray, Public Lecture on the Introduction of the CRAY-1 (1976)

Schon seit einigen Jahren ist die Rechengeschwindigkeit des Zentralprozessors (die sogenannte CPU: Central Processing Unit) wesentlich schneller, als das Speichersubsystem Daten nachliefern kann. Dieser Geschwindigkeitsunterschied nimmt weiterhin zu. Um diese Lücke zu schließen, verwendet man sogenannte Caches. Das sind kleine Zwischenspeicher, auf die die CPU um ein Vielfaches schneller als auf den eigentlichen Hauptspeicher zugreifen kann. Programme, die diese Caches effektiv nutzen, haben auf dem gleichen Rechner wesentlich kürzere Laufzeiten als solche, die auf diese Speicherhierarchie keine Rücksicht nehmen. Das Rückgrat des inelastischen Multislice-Verfahrens ist das elastische Multislice-Verfahren, welches im Laufe einer inelastischen Multislice-Rechnung viele Male aufgerufen wird. In diesem Anhang werden die einzelnen Schritte hin zu einer neuen, effizienten Implementierung des elastischen Multislice-Verfahrens beschrieben.

Auf den ersten Blick scheint das Multislice-Verfahren im Prinzip den folgenden Programmaufbau nahezulegen:

```
Subroutine multi_elast(start,slices,Psi)
  Do l= start,slices
    Call mul  (Psi,tr(ld_tr(tr_list(l))))
    Call fft2d(Psi,+1)
    Call mul  (Psi,fr(ld_fr(fr_list(l))))
    Call fft2d(Psi,-1)
  Enddo
End
```

Darin bedeuteten `tr`, `fr` die Matrizen mit den Transmissions- und den Fresneffunktionen, und `tr_list`, `fr_list` sind Felder mit den Zuordnungen der Scheibchen `l` des

Objektes zu den Transmissions- und Fresneelfunktionen.<sup>1</sup> `ld_tr` und `ld_fr` sind Funktionen über die diese Matrizen geladen werden bzw. die sie bei Bedarf berechnen.<sup>2</sup> Der von diesen Funktionen zurückgelieferte Funktionswert gibt diejenige Position in den Matrizen `tr`, `fr` an, ab der die zu diesem Scheibchen `l` passenden Werte stehen. Für den Fall, daß alle Transmissions- und Fresneelfunktionen im Hauptspeicher vorgehalten werden, ist dieser Funktionswert also gleich dem Argument `tr_list` bzw. `fr_list`. Ferner ist hier `psi` die durch das Objekt zu propagierende Wellenfunktion. Die Unteroutine `mul` multipliziert einfach ihre beiden Argumente punktweise miteinander, wobei das Ergebnis im ersten Argument zurückgeliefert wird. Entsprechend berechnet die Unteroutine `fft2d` die zweidimensionale, direkte oder inverse FOURIER-Transformation der Wellenfunktion `psi` in Abhängigkeit davon, ob das zweite Argument positiv oder negativ ist.

Es scheint hier also einfach alles darauf hinauszulaufen, die zweidimensionale FOURIER-Transformation `fft2d` effizient zu implementieren. Der Berechnungsaufwand in der `mul`-Routine erscheint demgegenüber von vernachlässigbarem Einfluß. Diese in den Lehrbüchern über Numerik und Algorithmen tradierte Ansicht beruht wesentlich auf der Prämisse, daß man den Berechnungsaufwand eines numerischen Algorithmus dadurch bestimmen kann, daß man einfach die Anzahl der im wesentlichen vom Rechner durchzuführenden numerischen Operationen<sup>3</sup> abzählt. Ein schnellerer Algorithmus ist dann ein solcher mit einer kleineren Anzahl dieser Operationen. Das Verhältnis des Rechenaufwandes der zweidimensionalen FOURIER-Transformation zu dem der `mul`-Routine ist etwa<sup>4</sup>  $10 \log_2 N$  zu 6, wenn  $N^2$  die Anzahl der Punkte in der Matrix `psi` ist. Für eine Matrix mit  $512 \times 512$  Gitterpunkten wäre dieses Verhältnis also 90/6. Auf dieser Überlegung beruht der obige Aufbau des elastischen Multislice-Verfahrens.

Um zu verstehen, warum das einfache Abzählen der durchzuführenden numerischen Operationen bei den heutigen Arbeitsplatzrechnern kein gutes Maß ist und welche Nachteile der so nahe liegende obige Aufbau des Multislice-Verfahrens mit sich bringt, ist ein wenig Hintergrundwissen notwendig. In den heutigen Arbeitsplatzrechnern steht ein immens hoch getakteter Prozessor mit einer Taktfrequenz von der Größenordnung 1000 MHz einem vergleichsweise langsamen Speichersubsystem von ca. 100 MHz Systemtakt gegenüber. Die dabei auftretende Schere von einem Faktor der Größenordnung 10 oder mehr zwischen der Geschwindigkeit des schnellen Prozessors und dem Hauptspeicher (RAM: Random Access Memory) versucht man dabei mit einer meist zweistufigen<sup>5</sup> Hierarchie von kleineren, aber dafür schnelleren Zwischenspeichern, den sogenannten Caches, zu schließen. Man bezeichnet sie in der Folge nach absteigender Zugriffsgeschwindigkeit als L1-, L2- und L3-Caches.<sup>6</sup> Sie haben typische Größen von 8 - 64 KByte für den L1-, und 0.5 - 4 MByte

<sup>1</sup>In einem Kristall wiederholen sich ja die Transmissions- und Fresneelfunktionen mit einer Periode, die der Anzahl der Subscheibchen der Einheitszelle entspricht. Die Anzahl der `slices` ist dann i. allg. ein Vielfaches dieser Periode. Die Periode der Transmissionsfunktionen muß dabei nicht zwangsläufig mit der der Fresneelfunktionen übereinstimmen.

<sup>2</sup>Diese darinliegende Flexibilität wird uns natürlich einige Prozente an Rechenzeit kosten, im Vergleich zu einer separaten Behandlung aller drei vorkommenden Fälle durch extra dafür konzipierte Routinen. Diesen Nachteil gegenüber den konventionellen Implementierungen des elastischen Multislice-Verfahrens werden wir in der Folge allerdings weit mehr als nur ausgleichen.

<sup>3</sup>Für unsere Zwecke hier sind das (einfach genaue) Gleitpunkt- oder Floating-point-Operationen.

<sup>4</sup>zu diesem Faktor siehe Anhang F Fußnote 6 auf Seite 148.

<sup>5</sup>dreistufig bei alpha-21164 Systemen.

<sup>6</sup>von L wie Level. Zwecks Vereinfachung der Diskussion wird hier auf eine Unterscheidung von Daten-Cache und Instruktions-Cache verzichtet. Nur soviel sei hierhergesetzt: Neben dem L1-Datencache gibt es ferner einen i. allg. gleich großen L1-Instruktionscache. Im L2-Cache können sowohl Daten als auch Programminstruktionen liegen. Von daher kommt es bezüglich Performancegesichtspunkten auch auf die Länge, ja sogar auf das Prozedurlayout eines Programmes an.

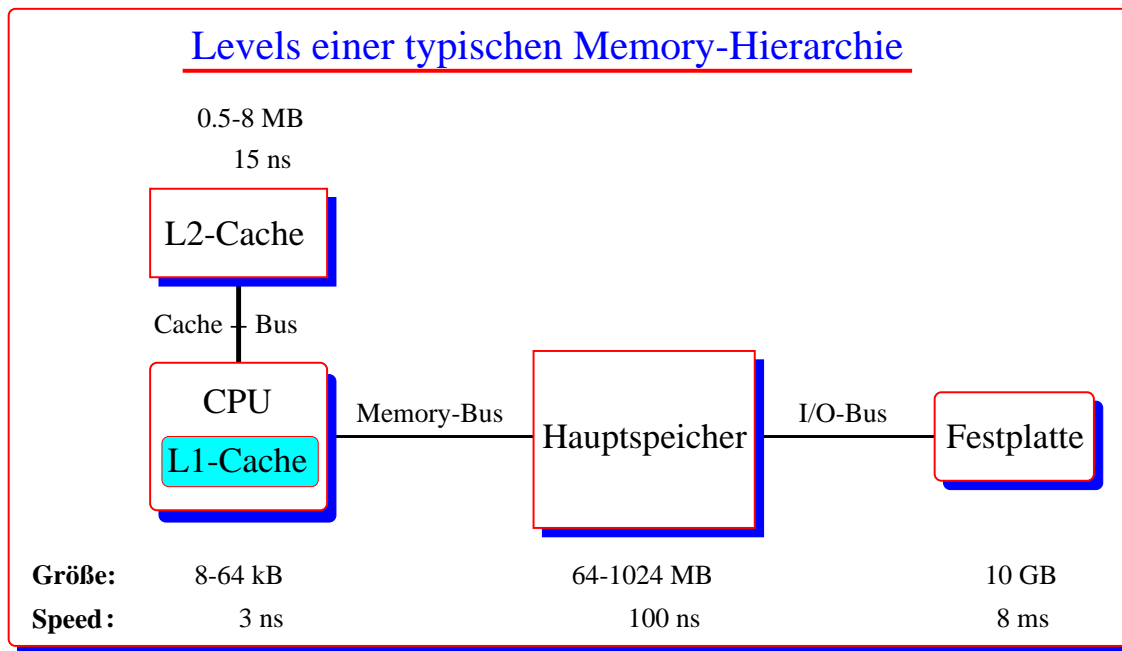


Abbildung E.1: Vereinfachte Speicherhierarchie. Zwischen CPU und Hauptspeicher gibt es eigentlich noch die sogenannte Northbridge des Chipsatzes. Über diese sind die alle Komponenten eines Computersystems an den Prozessorbus angeschlossen. Sie verursacht zusätzliche Latenzzeiten beim Zugriff auf den Hauptspeicher. Die Zeiten geben typische Zugriffszeiten an.

für den L2-Cache.<sup>7</sup> Der L1-Cache befindet sich dabei auf dem CPU-Chip und läuft mit voller Taktfrequenz. Der schon wesentlich langsamere L2-Cache ist meist auf separaten Chips untergebracht und wird mit Taktfrequenzen zwischen einem Drittel und der vollen CPU-Taktfrequenz (wenn L2 auf dem CPU-Chip) betrieben. Daß man nicht einfach den gesamten Hauptspeicher von der Größenordnung 256 MByte mit solch schnellen Speichermodulen wie den L2-Cache aufbaut, ist einfach eine Frage der Kosten und des Energieverbrauchs dieses Speichertyps (sogenanntes SRAM: Static-RAM). Stattdessen verwendet man für den Hauptspeicher sogenanntes DRAM (Dynamic-RAM). Eine Speicherzelle besteht hier nur aus einem einzigen Transistor (und einem Kondensator), statt deren sechs beim SRAM-Typ. Auf der gleichen Chipfläche bringt man also viel mehr dieser Speicherzellen unter. Der Preis dafür ist das D vor dem RAM: Dieser Speichertyp bedarf des regelmäßigen Auffrischens (Refresh) seines Inhalts, damit dieser erhalten bleibt. Während eines solchen Refresh's kann auf die davon betroffenen Teile des Hauptspeichers nicht zugegriffen werden. Das ist in bis zu etwa 0.5% der Gesamtzeit der Fall und eine der Ursachen für leichte Laufzeitschwankungen eines Programmes. Ferner kann auf eine bestimmte Speicherzelle eines solchen Speichermoduls nicht direkt zugegriffen werden. Dies würde zu viele Addressleitungen erfordern. Stattdessen erfolgt der Zugriff gemäß eines Zeilen-/Spalten-Verfahrens (RAS/CAS: Row/Column Access Select) ähnlich der Adressierung eines Matrixelementes einer zweidimensionalen Matrix, indem zunächst eine komplette Zeile (RAS) in einen modulinternen Zwischenpuffer (eine Page; ca. 4KByte) geladen wird und danach (d. h. nach einer modulspezifischen Wartezeit) über dieselben Addressleitungen das

<sup>7</sup> AlphaStation-21164a-500/500: L1= 8 KByte, L2= 96 KByte, L3= 8 MByte. AMD-K7 (Athlon): L1= 64 KByte, L2= 512 KByte (Modell 1 und 2) bzw. 256 KByte bei voller CPU-Taktfrequenz für Modell 4, alpha-21264: L1= 64 KByte, L2= 2,4 oder 8 MByte. Auf die Unterschiede zwischen direkt-mapped und N-fach assoziativen Caches sowie zwischen Write-Back- und Write-Through-Caches gehe ich genauso wenig ein, wie auf die sogenannte Write-allocation. Das Programm ist auch in dieser Hinsicht nicht speziell optimiert worden.

CAS-Signal angelegt wird, woraufhin man, wieder nach einer modulspezifischen Wartezeit, das gewünschte Datum erhält. Es dauert also solcherweise viele CPU-Taktzyklen, bis die CPU an ihre gewünschten Daten kommt. Um diese Latenzzeiten zu mildern, bedient man sich deshalb eines weiteren Tricks: Zwar dauert es vergleichsweise lange, bis man auf diese Weise an das erste Datenwort herankommt, auf die linear nachfolgenden Datenwörter aber kann viel schneller zugegriffen werden. Sie stehen ja in jenem modulinternen Zwischenpuffer. Man teilt die Caches deshalb in sogenannte Cachelines ein und lädt neben dem gewünschten Datenwort gleich die ganze Cacheline (typisch sind 32 (Athlon: 64) Byte für L1, 64 Byte oder mehr für L2) auf einen Rutsch. Man nennt das einen pipelined Burst-Cache (PB-Cache). Bei dem in heutigen Arbeitsplatzrechnern eingesetzten SD-SDRAM (Single-Data-Synchronous-DRAM) kann ab dem ersten langsamen Datenwort in jedem (System-)Takt ein weiteres Datenwort gelesen werden, bis zu einem Page-miss, d.h. bis der modulinterne Zwischenpuffer „leer“ ist. Ferner gibt es auch eine maximale Anzahl von Page-Hit-Zugriffen auf diesen modulinternen Zwischenpuffer, nachdem ein Page-miss-Zyklus zum Wiederauffrischen seines Inhalts notwendig wird<sup>8</sup>

Den Einfluß der Speicherhierarchie auf die erzielbare Rechenleistung wird exemplarisch durch die folgende Abbildung E.2 verdeutlicht. Daraus folgt: Bei der Abschätzung der Effizienz eines Algorithmus kommt es nicht allein auf die Anzahl der Gleitpunktoperationen an sondern auch und vor allem darauf, wie lokal und linear dabei auf den Hauptspeicher zugegriffen wird. Das, was letztlich zählt, ist die Zeitdauer in CPU-Taktzyklen. Das war auch früher so, nur das hier die Anzahl der Gleitpunktoperationen ein adäquates Maß für die Abschätzung der Effizienz eines Algorithmus war, da hier die Speicherzugriffszeit klein gegenüber den Rechenzeiten für Gleitpunktoperationen war. Dieses Maß hatte ferner den Vorteil, ganz unabhängig von dem verwendeten Rechner zu sein. Das Zeitmaß hängt hingegen von vielen Unwägbarkeiten (Größe, Geschwindigkeit und Organisation der Caches, Einfluß des Multiuser-Betriebssystems auf den Inhalt der Caches, nichtkonstante Latenzzeiten, ... ) ab.

Um einzusehen, daß der obige Aufbau des Multislice-Verfahrens über explizite zweidimensionale FOURIER-Transformationen die Eigenheiten heutiger Arbeitsplatzrechner nicht optimal nutzt, nehme ich zunächst an, daß dem nicht so wäre. Wir sehen uns also zunächst an, was man über den Aufbau der Routine `fft2d` im Hinblick auf die obige Diskussion über Speicherhierarchien und Cachelines lernen kann.

Einigermaßen weit verbreitet ist mittlerweile die Erkenntnis, daß man auf den Hauptspeicher wenn möglich nicht in großen Sprüngen zugreifen soll. Bei einem zweidimensionalen Feld wie  $A(n, m)$  gibt es deshalb einen schnellen Index, bei dem linear auf den Speicher zugegriffen wird und einen langsamen Index, bei dem in Sprüngen auf den Speicher zugegriffen wird. In der Programmiersprache Fortran ist der erste Index der schnelle und der zweite der langsame. Die Bezeichnung eines Matrixelementes mit  $A(n, m)$  stimmt also in Fortran mit der aus der Mathematik gewohnten Bezeichnungsweise überein. Die einzelnen Matrixelemente liegen hier in der Folge<sup>9</sup>

$$A_{11}, \dots, A_{N1}, A_{12}, \dots, A_{N2}, \dots, A_{NM}, \quad : \text{Fortran}$$

hintereinander im Speicher. In der Programmiersprache C liegen hingegen die Matrixelemente der Matrix  $A$  (normalerweise) in der transponierten Reihenfolge im Speicher

$$A_{11}, \dots, A_{1M}, A_{21}, \dots, A_{2M}, \dots, A_{NM}, \quad : C$$

<sup>8</sup>Die obige Darstellung ist stark vereinfacht. Eine genauere Beschreibung der Funktionsweise von PC-SDRAM-Speichermodulen kann man z. B. in [24] und [25] finden. Hintergrundwissen über die Funktionsweise moderner Prozessoren und Caches vermittelt das Buch von Hennessy und Patterson [55].

<sup>9</sup>Merkspruch: Zeile zuerst, Spalte später.

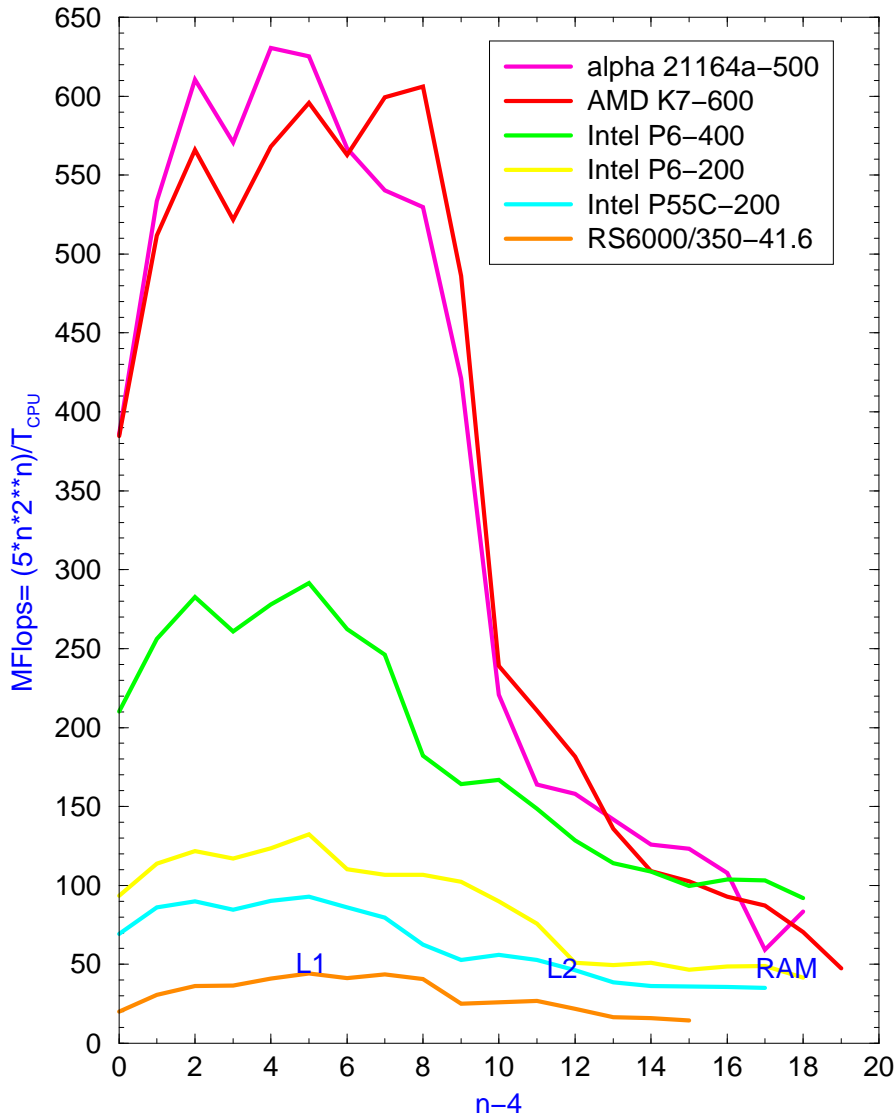


Abbildung E.2: Einfluß der Speicherhierarchien auf die Rechenleistung einer eindimensionalen schnellen FOURIER-Transformation (FFT) für sechs verschiedene Arbeitsplatzrechner. Unter Linux 2.2.x wurde als Kompiler der g77/gcc-2.95.2 verwendet. Auf der AlphaStation 500/500 und der IBM-RS6000 wurden die nativen Fortran Kompiler von Digital unter Digital-Unix-4.0B bzw. IBM-xlf unter AiX 3.2.5 verwendet.

Auf diesen Unterschied muß man bei Mischen von Fortran- und C- Routinen achten.

Bei der zweidimensionalen FOURIER-Transformation einer  $N \times M$ -Matrix

$$\begin{aligned}
 \text{Psi}(h, k) &= \sum_{n=0}^{N-1} \sum_{m=0}^{M-1} \exp \left\{ 2\pi i \frac{h}{N} n \right\} \exp \left\{ 2\pi i \frac{k}{M} m \right\} \text{Psi}(n, m) \\
 &= \sum_{m=0}^{M-1} \exp \left\{ 2\pi i \frac{k}{M} m \right\} \left[ \sum_{n=0}^{N-1} \exp \left\{ 2\pi i \frac{h}{N} n \right\} \text{Psi}(n, m) \right] \\
 &= \sum_{m=0}^{M-1} \exp \left\{ 2\pi i \frac{k}{M} m \right\} \text{Psi}(h, m)
 \end{aligned}$$

kann man also zunächst die  $M$  eindimensionalen FOURIER-Transformationen der Länge  $N$  über die Spalten (den ersten Index) durchführen. Dabei wird in der Programmiersprache



Fortran innerhalb dieser eindimensionalen FOURIER-Transformationen auf je  $N$  hintereinander im Speicher liegende Elemente zugegriffen. Für unsere Zwecke hier können wir annehmen daß diese  $N$  Elemente vollständig in den L1-Cache der CPU passen.<sup>10</sup> Wir können damit hier die speziellen Methoden für die effiziente Berechnung großer eindimensionaler FOURIER-Transformationen übergehen [6][7] und wählen für die Berechnung der eindimensionalen FOURIER-Transformation einen Algorithmus, der im Prinzip konventionell aufgebaut ist. Diese Algorithmen sind in dem Fall, daß alle (oder nahezu alle) Daten in den L1-Cache passen, im Prinzip schneller als jene Algorithmen für große eindimensionale FOURIER-Transformationen. Das hier wiederholt gebrauchte „im Prinzip“ bezieht sich darauf, daß man auch hier leicht einen Faktor 2 (oder mehr) verschenken kann, wenn man einen solchen Algorithmus allzu sorglos implementiert oder auswählt. Aber auch bei so weit außen liegenden Schleifen wie der über  $m$  in der obigen zweidimensionalen FOURIER-Transformation, kann man leicht einen Faktor 2 (oder mehr) verschenken. Die übliche Berücksichtigung der Tatsache, daß der Arbeitsplatzrechner äußerst empfindlich auf nichtsequenzielle Speicherzugriff reagiert, besteht nämlich nur darin, bei den zur vollständigen zweidimensionalen FOURIER-Transformation noch fehlenden  $N$  eindimensionalen FOURIER-Transformationen bezüglich des zweiten Index  $m$ , die hier auf Lücke liegenden Feldelemente der Matrix Psi zunächst in ein eindimensionales Feld  $F$  der Länge  $M$  umzukopieren und dann auf dieses Feld die eindimensionale FOURIER-Transformation anzuwenden. Anschließend werden die so erhaltenen Elemente von  $F$  wieder in die Matrix Psi zurückkopiert. Also lautet die Standardantwort auf eine Speicherhierarchie:

```

C  transformation der Zeilen: =
      Do n= 0,Nx-1
        Do m= 0,My-1
          F(m)= Psi(n,m)
        Enddo

        Call fft1d(F,My)

        Do m= 0,My-1
          Psi(n,m)= F(m)
        Enddo
      Enddo

```

nebst einer entsprechenden Schleife für die inverse zweidimensionale FOURIER-Transformation, nur daß hier beim Zurückschreiben das Ergebnis so normiert wird, daß sich die Vorwärts- und die Rückwärts-Transformation in ihrer Wirkung gegenseitig aufheben.<sup>11</sup> Dabei wurden hier und im folgenden die  $M$  eindimensionalen FOURIER-Transformationen der Länge  $N$  über die Spalten der Kürze halber fortgelassen. Man möge sich dies hier also noch hinzudenken.

Auf einem 600 MHz AMD-K7 (Athlon, Modell 1)-Rechner der ersten Mainboard-Generation ergibt ein solcher Aufbau der zweidimensionalen FOURIER-Transformation bei einer quadratischen  $N \times N$ -Matrix mit  $N = 512$  Elementen eine Rechenleistung von 126 MFlops.<sup>12</sup> Zum Vergleich: Die Rechenleistung der dabei verwendeten eindimensionalen

<sup>10</sup>Die maximale, für das inleastische Multislice-Verfahren von den Rechenzeiten her praktikable Matrixgröße ist  $N=1024$ , und eine einfach genaue komplexe Zahl belegt 8 Byte.

<sup>11</sup>Vergleiche dazu Anhang F.

<sup>12</sup>Die MFlops sind dabei als  $(10N^2 \log N)/T_{\text{CPU}}$  zu lesen. Sie sind also Pseudo-MFlops und dienen hier nur als bequemes Maß zum Vergleich der Rechenleistungen. Als Compiler wurde der g77/gcc-2.95.2 verwendet, der derzeit beste Compiler für Linux.

FOURIER-Transformation liegt dabei bei 600 MFlops. Das ist also schon ein enormer Performance-Einbruch aufgrund des 512-mal größeren zu bewegenden Datenvolumens. Die Situation ist sogar noch schlimmer: Verwendet man nämlich dabei eine eindimensionale FOURIER-Transformation mit einer Rechenleistung von nur 263 MFlops, so ergibt dieser Aufbau der zweidimensionalen FOURIER-Transformation eine Rechenleistung von 96 MFlops. D.h. also: Eine 2.3 mal größere Rechenleistung der eindimensionalen FOURIER-Transformation ergibt bei diesem Aufbau der zweidimensionalen FOURIER-Transformation nur eine Verbesserung der Rechenleistung um den Faktor 1.31. Offensichtlich ist hier die ungenügende Berücksichtigung der Speicherhierarchie der wesentliche, die Rechenleistung begrenzende Faktor.

Eine effektivere Ausnutzung der Speicherhierarchie erhält man nun mit dem folgendem spekulativen Programmaufbau:

```

      Do m= 0,My-1
        F(m)= Psi(0,m)
      Enddo

C  transformation der Zeilen: =
      Do n= 0,Nx-1
        Call fft1d(F,My)

        Do m= 0,My-1
          Psi(n,m)= F(m)
          F(m)      = Psi(n+1,m)
        Enddo
      Enddo

```

Spekulativ ist hieran, daß man sich hierbei beim letzten Durchlauf Lesezugriffe über die vereinbarten Indexgrenzen hinaus einhandelt. Damit verbaut man sich alle durch spezielle Kompileroptionen mögliche Programmtests bezüglich Indexüberschreitungen. Allerdings sind solche bewußten Lesezugriffe über die vereinbarten Indexgrenzen hinaus harmlos. Die ggf. undefinierten Werte, die das Feld  $F$  beim letzten Durchlauf erhält, werden vom Programm nicht weiter verwendet. Diese Maßnahme alleine (spekulatives „Read-ahead“) erhöht die Rechenleistung auf 188 MFlops; also fast um einen Faktor 1.5. Wenn man sich jetzt außerdem an das oben über die Cachelines Gesagte erinnert, so sieht man, daß sich die Rechenleistung weiter steigern läßt, wenn man statt einem Zeilenpuffer  $F$  zwei oder mehrere Zeilenpuffer verwendet. Im Falle der doppeltgepufferten, zweidimensionalen FOURIER-Transformation hat man etwa

```

      Do m= 0,My-1
        F0(m)= Psi(0,m)
        F1(m)= Psi(1,m)
      Enddo

C  transformation der Zeilen: =
      Do n= 0,Nx-1,2
        Call fft1d(F1,My)
        Call fft1d(F0,My)

        Do m= 0,My-1

```

```

      Psi(n+0,m)= F0(m)
      Psi(n+1,m)= F1(m)
      F0(m)      = Psi(n+2,m)
      F1(m)      = Psi(n+3,m)
    Enddo
  Enddo

```

Das ergibt eine weitere Steigerung der Rechenleistung auf 257 MFlops, also um einem weiteren Faktor 1.37. Im Falle, daß man vier solcher Zeilenpuffer verwendet, erhöht sich die Rechenleistung weiter auf etwa 330 MFlops, also nochmals um einen Faktor 1.28, und mit acht Zeilenpuffern erreicht man 389 MFlops. Die **YaMS** beiliegenden Treiber für nahezu alle relevanten FOURIER-Transformationen haben fast alle einen solchen doppeltgepufferten, spekulativen Read-ahead-Treiber.

Nun sind wir soweit zu verstehen, wieso der konventionelle Programmaufbau des elastischen Multislice-Verfahrens bei einem Rechner mit einer Speicherhierarchie zu erheblichen Performance-Verlusten führt. In der Sequenz

```

  Call fft2d(Psi,+1)
  Call mul  (Psi,fr)
  Call fft2d(Psi,-1)

```

werden ja in der ersten `fft2d` die Zeilen wieder vollständig in die Matrix `Psi` zurückgeschrieben, worauf dann die Routine `mul` bei der punktweisen Multiplikation der beiden Matrizen wieder die gesamte Matrix `Psi` durch den Speicher „schiebt“. Anschließend werden bei der inversen `fft2d` die Zeilen aus der Matrix `Psi` wieder in ihren Zeilenpuffer herauskopiert. Offensichtlich muß man hier die einzelnen Routinen zu einer einzigen zusammenfassen, um das unnötige Rein- und Raus- Kopieren der Zeilen zu vermeiden. In der einfachsten Form gäbe das zunächst:

```

  Do m= 0,My-1
    Call fft1d(Psi(0,m),Nx)
  Enddo

  Do n= 0,Nx-1
    Do m= 0,My-1
      F(m)= Psi(n,m)
    Enddo

    Call fft1d(F,My)

    Do m= 0,My-1
      F(m)= Norm(F(m)*fr(n,m))
    Enddo

    Call fft1di(F,My)

    Do m= 0,My-1
      Psi(n,m)= F(m)
    Enddo
  Enddo

```

```

Do m= 0,My-1
  Call fftldi(Psi(0,m),Nx)
Enddo

```

Um hier beim Auslesen der Matrixelemente der Fresneffunktion  $f_r$  nicht sprungweise auf den Speicher zuzugreifen, wird man darin die transponierte Fresneffunktion ablegen, d. h. die Zeilen stehen in den Spalten, sodaß man in der obigen Sequenz  $f_r(n,m)$  durch  $f_r(m,n)$  ersetzen kann. Die Funktion  $Norm$  sorgt hier ferner für die korrekte Normierung der inversen FOURIER-Transformation.

Diese Form ist aber aus mehreren Gründen nicht optimal. Erstens kann man hier auf die mittlere Sequenz noch die obige Read-ahead-Transformation anwenden, und zum anderen gibt es bei der hier noch fehlenden Multiplikation mit der Transmissionsfunktion  $tr$  wieder eine schlechte Berücksichtigung der Speicherhierarchie. Schließlich ist die Matrix  $f_r$  wegen der Bandbegrenzung (siehe Anhang F, Seite 141ff) keine voll besetzte Matrix. Diese Bandbegrenzung ermöglicht es, in der mittleren Sequenz jene Teile wegzulassen, die eben wegen der Bandbegrenzung der Funktion  $f_r$  „ausgenullt“ werden. Stattdessen wird man diese Teile von  $Psi$  besser direkt Null setzen. Dadurch spart man viele FOURIER-Transformationen ein.

Um auch die schlechte Berücksichtigung der Speicherhierarchie bei der Multiplikation mit der Transmissionsfunktion zu beseitigen, muß man je zwei der obigen Sequenzen hintereinander schreiben, wobei die Schleife mit der punktweisen Multiplikation der Wellenfunktion mit der Transmissionsfunktion in die Mitte dieser zwei Sequenzen einzufügen ist. Die charakteristische Sequenz ist hier also zunächst:

```

Do m= 0,My-1
  Call fftldi(Psi(0,m),Nx)
Enddo

Do m= 0,My-1
  Do n= 0,Mx-1
    Psi(n,m)= Psi(n,m)*tr(n,m)
  Enddo
Enddo

Do m= 0,My-1
  Call fftld(Psi(0,m),Nx)
Enddo

```

Erheblich besser ist hier offenbar die Umformung in

```

Do m= 0,My-1
  Call fftldi(Psi(0,m),Nx)

  Do n= 0,Mx-1
    Psi(n,m)= Psi(n,m)*tr(n,m)
  Enddo

  Call fftld(Psi(0,m),Nx)
Enddo

```

da hier die Wellenfunktion  $\Psi$  nur einmal statt dreimal komplett aus dem Speicher ausgelesen und zurückgeschrieben wird. Ferner zeigt es sich, daß man das oben erwähnte direkte Null setzen der Elemente mit zu großer Frequenz besser in diese Schleife verschiebt.

In der folgenden Abbildung E.3 werden die wesentlichen Punkte der diskutierten optimierten Implementierung noch einmal zusammengefaßt dargestellt.

Da auf diese Weise je zwei Schritte des Multislice-Verfahrens miteinander verzahnt werden („Loop-wrap-around-order“), muß man natürlich noch passende Teile für den Anfang („wind-up“) und das Ende („wind-down“) vorsehen, und zwar so, daß man auch im Spezialfall eines Scheibchens, also bei fehlendem Mittelteil, ein korrektes Ergebnis bekommt.

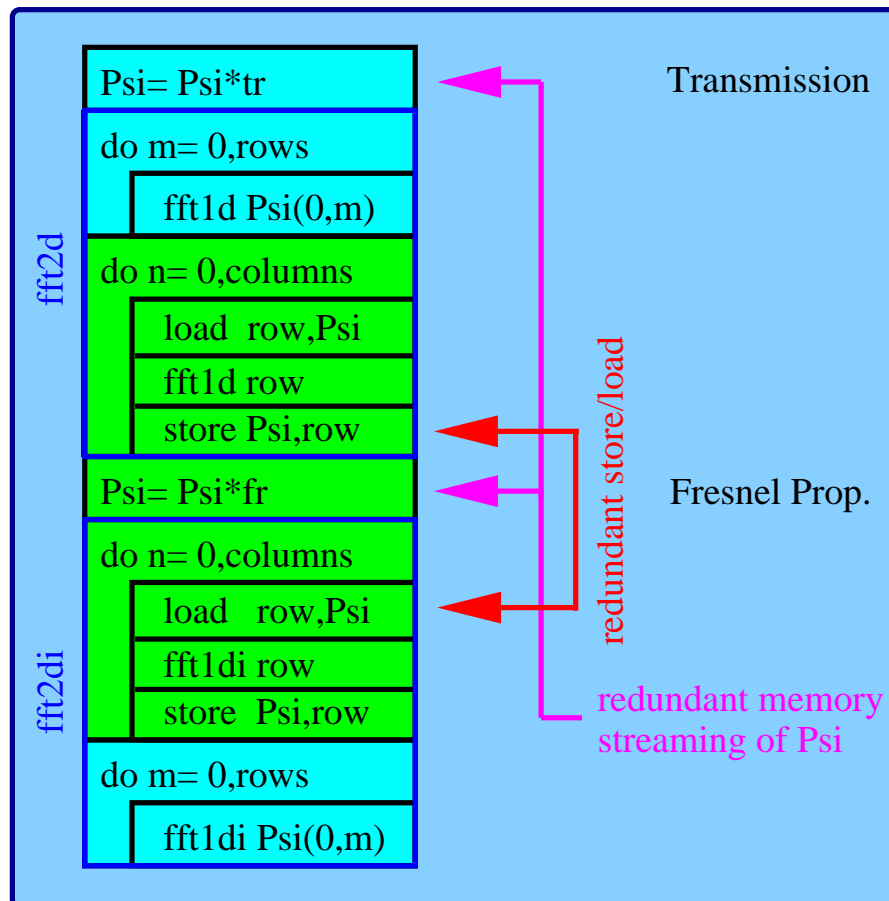


Abbildung E.3: Graphische Darstellung der schlechten Berücksichtigung der Speicherhierarchie der konventionellen Implementierung des elastischen Multislice-Verfahrens. Farblich unterlegt sind die Code-Sequenzen, die bei der optimierten Implementierung zusammengefaßt werden.

Diese Verzahnung von je zwei Schritten des Multislice-Verfahrens ist der angemessene Programmaufbau für Rechner mit Speicherhierarchien, und nicht die konventionelle Zerlegung in die zwei unabhängigen Teile zweidimensionale FOURIER-Transformation und Punkt-Multiplikation. Auch die Beobachtung, daß je zwei FOURIER-Transformationen mit einer Punkt-Multiplikation in der Mitte eine Faltungsoperation darstellen, und dem daraus folgenden Aufbau mittels einer speziellen Faltungsroutine und einer Routine für die Punkt-Multiplikation, ergibt keinen adäquaten Programmaufbau. Das ersieht man leicht schon daraus, daß es ja für diese Zerlegung in Unterprogramme zwei gleichberechtigte Möglichkeiten gibt. Es ist genau dieses Faktum, welches wir oben berücksichtigt haben. Dieser neue Programmaufbau des elastischen Multislice-Verfahrens ergibt eine wesentlich effizientere Nutzung der Caches, speziell des L1-Caches. Ferner wird durch diesen Programmaufbau auch der zu bewältigende Rechenumfang reduziert. Somit ist dieser Programmaufbau auf

allen Rechnertypen effizienter.

Der so entstandene Aufbau mit einem Zeilenpuffer und Read-ahead-Transformation ergibt eine um den Faktor 1.5 bessere Performance (= kleinere Gesamtlaufzeit) als der konventionelle Aufbau mit doppelt gepufferten, zweidimensionalen  $\beta$ Fourier-Transformationen, wenn die Bandbegrenzung auf 0.5 gesetzt ist. Dabei geht also nur ein Faktor 1.33<sup>13</sup> auf Kosten der effektiveren Berücksichtigung der Bandbegrenzung, der Rest auf die effektivere Berücksichtigung der Speicherhierarchie.<sup>14</sup>

	POWER1-41.6		P55C-200		P6-400		K7-600	
FFT	1d	2d	1d	2d	1d	2d	1d	2d
fftu	15.2	21.2	7.53	11.06	2.63	3.65	1.79	2.78
Ooura [97]	16.3	22.5	9.23	13.30	2.80	3.86	1.94	2.96
fftw [40]	58.8	86.1	9.38	14.68	2.97	4.76	2.00	5.53
fftpack [122]	16.9	23.4	9.19	13.22	3.96	5.41	2.62	3.85
Singleton [116]	21.8	29.6	13.70	19.27	4.03	5.52	2.65	3.93
Green [48]	16.0	22.4	13.20	18.59	3.77	5.18	2.75	4.08
gpfa [123]	40.3	55.0	15.92	22.25	4.92	6.69	3.45	5.00
nr [95]	36.8	50.3	17.07	23.77	5.41	7.36	3.53	5.08
fft2_dit	51.3	70.6	21.84	30.13	8.56	11.63	6.10	8.60
fft586	22.6	31.6	10.32	14.78	3.52	4.83	2.38	3.61
Kirkland [66]	-	38.5	-	18.86	-	6.46	-	6.34
EMS	-	68.7	-	44.05	-	18.93	-	17.77

Tabelle E.1: Programmlaufzeiten von **YaMS**-5.0.3 in Sekunden für: (Pseudo-) Si-111, 200-Atome auf einer Ebene, 10-Scheibchen, 512 x 512-Matrix, elastische Rechnung mit Integer-Phasen als Funktion der verwendeten FFT-Implementierung. Die Zahl hinter der Prozessorbezeichnung gibt dessen Kerntaktfrequenz an. Darin bedeutet: - = nicht gemessen. Zu fast jeder dieser FFT-Implementierung gibt es **YaMS** beiliegende 1d- und 2d-Treiberrouinen. Die *fftu* ist eine nach den im Abschnitt F.6 des Anhangs F erläuterten Prinzipien optimierte Fassung der dem Multislice-Programm von Kirkland [66] beiliegenden 1d-FFT-Routine *fft842*. Bei der mit Kirkland bezeichneten Zeile wird dessen Original 2d-FFT Implementierung an **YaMS** gekoppelt; bei der mit EMS bezeichneten Zeile Stadelmann's 2d-FFT Implementierung. Die *fft2\_dit* ist eine an **YaMS** angepasste naive Radix-2 FFT und *fft586* eine optimierte Fassung von Kirkland's *fft842* (siehe: Anhang F.6).

Wie aus den obigen Kodesequenzen ersichtlich, werden die konkreten Software Implementierungen der 1d- oder 2d-FFT über die Schnittstellen `fft1d(F_1d(), N)` und `fft1di(F_1d(), N)` bzw. `fft2d(F_2d(), ±1)` vom Hauptprogramm **YaMS** aufgerufen. Zusätzlich ruft **YaMS** bei jedem Programmstart die Routine `fftinit()` auf, so daß darüber die internen Datenstrukturen einer FFT-Implementierung initialisiert werden

<sup>13</sup>Das ist der theoretische Maximalwert dieses Faktors, d.h. ohne Berücksichtigung des Performance--Verlustes aufgrund des komplizierteren Programmaufbaus.

<sup>14</sup>Dabei ist zu beachten, daß die zweidimensionale FOURIER-Transformation doppelt, die Multislice-Routine aber nur einfach gepuffert ist. Durch doppelte Pufferung der Multislice-Routine kann das Verfahren weiter beschleunigt werden. Ein dementsprechender Austausch des zentralen Teils der elastischen Multislice-Routine ergab für die hier betrachteten 512 x 512-Matrizen Faktoren von 3-5 % für den Intel P55C-200 und 10-17 % für den AMD K7-600 Prozessor bezogen auf die gesamte Programmlaufzeit. Die letzten Zahlen entsprechen in etwa dem Unterschied zwischen einem 600- und einem 800-MHz Prozessor. Mit steigendem Takt(miss)verhältnis CPU zu Speicher und zunehmender Matrixgröße dürfte dieser Faktor sogar noch weiter zunehmen, denn er bringt zum Ausdruck, daß der Prozessor selber noch schneller könnte, müßte er nicht auf seine Daten warten.

	P6-400		K7-600		21164a-500		R10k-195	
FFT	1d	2d	1d	2d	1d	2d	1d	2d
fftu	10.09	14.93	6.90	11.31	6.2	10.9	9.92	-
Ooura	10.96	15.97	7.45	12.24	6.4	11.1	10.14	-
fftw	11.77	20.01	7.76	24.33	6.8	15.1	11.15	-
fftpack	16.25	23.08	10.63	16.39	8.7	13.9	11.33	-
Singleton	16.62	23.47	11.03	16.72	11.2	17.5	15.21	-
Green	15.50	22.03	11.38	17.50	9.2	14.5	10.50	-
gpfa	20.81	29.03	14.79	21.70	13.9	22.4	22.31	-
nr	23.15	32.09	14.95	22.15	22.8	33.2	25.50	-
fft2_dit	37.90	51.45	26.97	38.21	25.8	37.3	-	-
fft586	14.25	20.40	9.68	15.08	10.4	16.5	-	-
Kirkland	-	28.04	-	27.73	-	19.2	-	-
EMS	-	84.82	-	81.95	-	56.4	-	-
dxml	-	-	-	-	6.6	11.4	-	-
sgi	-	-	-	-	-	-	8.22	-

Tabelle E.2: Programmlaufzeiten von **YaMS**-5.0.3 in Sekunden für: (Pseudo-) Si-111, 200-Atome auf einer Ebene, 50-Scheibchen, 512 x 512-Matrix, elastische Rechnung mit Integer-Phasen, als Funktion der verwendeten FFT-Implementierung. Die Zahl hinter der Prozessorbezeichnung gibt dessen Kerntaktfrequenz an. Darin bedeutet: - = nicht gemessen. Mit dxml und sgi (= *compilib.sgimath*) sind die vom jeweiligen Computer Hersteller optimierten FFT Versionen bezeichnet.

	P55C-200		K7-600	
<b>YaMS</b> (fftu,1d), B= 0.5	11.89	9.91	3.32	2.76
<b>YaMS</b> (fftu,1d), B= 2/3	16.39	12.86	4.88	3.82
<b>YaMS</b> (fftw,2d), B= 0.5	18.75	-	6.84	-
Kirkland ('95)	70.37	-	22.37	-
Kirkland ('98)	69.64	-	21.42	-
EMS	104.74	-	34.02	-

Tabelle E.3: Vergleich mit anderen (elastischen) Multislice-Programmen (s. Legende zu Tabelle E.4): Programmlaufzeiten in Sekunden für das obige Beispiel mit 10 Scheibchen und akkuraten Phasen. Der jeweils zweite Wert für die Programmlaufzeit in der ersten und zweiten Zeile gibt die Zeiten bei Verwendung der optionalen sincos-Optimierung zur Berechnung der komplexen Exponentialfunktionen an (s. Kapitel 6.8).

können. Auf diese Weise ist es leicht möglich, jede beliebige und damit die auf dem Rechner am schnellsten ablaufende FFT-Implementierung zu nutzen.

In den obigen Tabellen E.1 und E.2 ist dieses Vorgehen exemplarisch für die mir zugänglichen Rechner zusammengestellt.

Man kann **YaMS** demnach auch als Benchmark-Programm für FFT-Implementierungen verwenden. Man ersieht aus diesen Tabellen fernerhin auch, daß es auf mehr als nur auf die Taktfrequenz des Prozessors ankommt. Ansonsten würden sich für den schnelleren Prozessor immer die kürzeren Programmlaufzeiten ergeben.

In den Tabellen E.1 und E.2 ist die fftw die einzigste Routine, bei der der dieser Routi-

		P55C-200	K7-600
Kirkland (1995)	trans	47.74	16.98
	multi	19.75	4.63
	image	2.88	0.76
	Summe	70.37	22.37
Kirkland (1998)	trans	46.00	16.09
	multi	21.16	4.67
	image	2.48	0.66
	Summe	69.64	21.42
EMS (1995)	trans	57.75	15.18
	multi	42.88	17.44
	image	4.11	1.40
	Summe	104.74	34.02

Tabelle E.4: Rechenzeiten in Sekunden für die drei Teilprogramme trans: Berechnung des projizierten Potentials (Kirkland)/ der Transmissionsfunktion (EMS), multi: Propagation durchs Objekt und image: Berechnung des Bildes. Mit Kirkland (1995) ist die Fortran-Version [66] gemeint, mit Kirkland (1998) die C-Version, die dem Buch [67] beiliegt. Kirkland berücksichtigt zumindestens partiell die Speicherhierarchie.

ne beigefügte Treiber für die zweidimensionale schnelle FOURIER-Transformation (FFT) verwendet wird. Der IBM xlc-Kompiler kommt auf dem POWER1-Rechner<sup>15</sup> mit der fftw offenbar überhaupt nicht zu Rande.

Aus der Tabelle E.3 ersieht unter anderem sehr schön, wie trügerisch es ist, sich allein darauf zu verlassen, daß der augenblickliche rasante Anstieg der Rechenleistung der Prozessoren dazu führt, daß der elastische Multislice-Algorithmus so schnell ausführbar wird, daß damit auch das inleastische Multislice-Verfahren zu praktikablen Rechenzeiten führt. **YaMS** ist auf einem PC von 1996/97<sup>16</sup> immer noch schneller als EMS<sup>17</sup> auf den schnellsten, derzeit verfügbaren PC's.<sup>18</sup>

Selbst auf einer 10 Jahre alten IBM-RS/6000 Modell 350 (POWER1, 41.6 MHz) ist **YaMS-5.0.3** mit einer Programmlaufzeit von 27.25 s für dieses Problem schneller, als EMS auf einem aktuellen Arbeitsplatzrechner.

Wenn man allerdings in den Tabellen E.3 und E.4 nur das Verhältnis der Programmlaufzeiten auf beiden Rechnertypen von etwa einem Faktor drei mit dem entsprechendem Verhältnis der Peak-Floatingpoint-Rechenleistungen der beiden Rechner von ebenfalls einem Faktor drei vergleicht, dann wird es einem dabei nicht weiter auffallen, wieviel Rechenzeit man bei einer konventionellen Implementierung des elastischen Multislice-Verfahrens eigentlich verschenkt.

<sup>15</sup>RS6000 Modell 350 (AiX-3.2.5) mit den Compiler-Optionen: -O -qfloat=fltint:hsflt -qarch=pwr -qtune=pwr -qansialias wie auch für die FFT-Routine von J. Green und allen anderen FFT-Routinen (bei Fortran mit xlf und -qfloat=fltint,hsflt -qalias=noaryovrlp anstatt der obigen Optionen für diese beiden Flags).

<sup>16</sup>P55C-200, L2: 512KByte, Chipsatz: HX, Speichertyp: FPM (= Fast-Page-Mode).

<sup>17</sup>Es handelt sich dabei um die Version E M S -- DEC-Alpha V1.1 von 1995. Diese wurde von mir an die GNU-Linux Fortran- und C-Kompiler g77/gcc angepaßt.

<sup>18</sup>April 2000: 700 MHz effektiv (kostengünstig), 850 MHz real (beim Händler „um die Ecke“ zu erstehen), 1 GHz virtuell (nicht wirklich erhältlich).  
Oktober 2000: 850 MHz effektiv, 1 GHz real, 1.2 GHz virtuell. März 2001: 1.0 GHz effektiv, 1.2 GHz real, 1.333 GHz virtuell. Mai 2001: 1.2 GHz effektiv, 1.333 GHz real.



# Anhang F

## Schnelle FOURIER-Transformation (FFT) und Antialiasing

### F.1 Die Schnelle FOURIER-Transformation (FFT)

Die eindimensionale diskrete FOURIER-Transformation einer Funktion  $f$  sei definiert als

$$F_n := F(n\Delta k) = \sum_{j=-\frac{N}{2}+1}^{+\frac{N}{2}} f(j\Delta x) \exp \{2\pi i(n\Delta k)(j\Delta x)\} .$$

Wenn  $a$  das Periodizitätsintervall von  $f$  im Ortsraum ist, so wird  $\Delta x = a/N$  und  $\Delta k = 1/a$ , sodaß  $\Delta k \cdot \Delta x = 1/N$  ist. Dies ergibt

$$F_n = \sum_{j=-\frac{N}{2}+1}^{+\frac{N}{2}} f_j \omega_N^{nj}, \quad \text{mit} \quad \omega_N = \exp \left\{ +\frac{2\pi i}{N} \right\} .$$

Die inverse eindimensionale diskrete FOURIER-Transformation ist dementsprechend definiert als

$$f_j = \frac{1}{N} \sum_{n=-\frac{N}{2}+1}^{+\frac{N}{2}} F_n \bar{\omega}_N^{jn}, \quad \text{mit} \quad \bar{\omega}_N = \exp \left\{ -\frac{2\pi i}{N} \right\} ,$$

sodaß  $\omega_N \bar{\omega}_N = 1$  ist.

Üblicherweise laufen allerdings bei der diskreten FOURIER-Transformation die Indizes von 0 bis  $N - 1$ . Zu dem Ende ersetzt man bei der FOURIER-Transformation die Integrationsvariable  $x$  durch  $x - a/2$ , was die folgende Äquation ergibt:

$$F_n = e^{2\pi i(n\Delta k)(-a/2)} \sum_{j=0}^{N-1} f(j\Delta x - a/2) \exp \{2\pi i(n\Delta k)(j\Delta x)\} \equiv e^{-n\pi i} \sum_{j=0}^{N-1} f_j \omega_N^{nj} .$$

Die den negativen Frequenzen im FOURIER-Raum zugeordneten negativen Indizes  $n$  lassen sich mittels periodischer Fortsetzung eliminieren:

$$F_{-|n|} = F_{N-|n|}$$

für  $-N/2+1 \leq n \leq -1$ . Es ist diese FOURIER- oder herumgeklappte („wrap-around“) Anordnung, in der die Elemente einer diskret FOURIER-Transformierten Funktion im FOURIER-Raum vorliegen, wenn man die diskrete FOURIER-Transformation mittels einer schnellen FOURIER-Transformations- oder FFT-Routine realisiert. Ferner ist der Normierungsfaktor  $1/N$  in einer inversen FFT-Routine i. allg. nicht enthalten, da man normalerweise diesen Faktor mit anderen Faktoren im Programm verrechnen und damit eliminieren kann. Da es beim inelastischen Multislice-Verfahren möglich sein sollte, mehreren Scheibchen (z. B. eine Elementarzelle) zu einem dicken, „inelastischen“ Scheibchen zusammenzufassen, könnte man auf das notwendige explizite Normieren des Ergebnisses der inversen FOURIER-Transformation allerdings nur dann verzichten, wenn man für die Propagation dieses dicken Scheibchens einen eigenen Fresnelpropagator verwendet. Allerdings dürfte sich dieser Aufwand wohl kaum lohnen.

Weiterhin ist die zweidimensionale diskrete FOURIER-Transformation definiert als

$$F_{k,l} = \sum_{n=-\frac{N}{2}+1}^{+\frac{N}{2}} \sum_{m=-\frac{M}{2}+1}^{+\frac{M}{2}} f_{n,m} \omega_N^{kn} \omega_M^{lm}, \quad f_{n,m} = \frac{1}{NM} \sum_{k=-\frac{N}{2}+1}^{+\frac{N}{2}} \sum_{l=-\frac{M}{2}+1}^{+\frac{M}{2}} F_{k,l} \bar{\omega}_N^{nk} \bar{\omega}_M^{ml},$$

bzw. in der wrap-around-Anordnung und unterdrücken des Phasenfaktors  $\exp(-i\pi\{n+m\})$

$$F_{k,l} = \sum_{n=0}^{N-1} \sum_{m=0}^{M-1} f_{n,m} \omega_N^{kn} \omega_M^{lm} = \sum_{m=0}^{M-1} \omega_M^{lm} \sum_{n=0}^{N-1} f_{n,m} \omega_N^{kn},$$

$$f_{n,m} = \frac{1}{NM} \sum_{k=0}^{N-1} \sum_{l=0}^{M-1} F_{k,l} \bar{\omega}_N^{nk} \bar{\omega}_M^{ml} = \frac{1}{M} \sum_{l=0}^{M-1} \bar{\omega}_M^{ml} \left\{ \frac{1}{N} \sum_{k=0}^{N-1} F_{k,l} \bar{\omega}_N^{nk} \right\}.$$

Im Gegensatz zu der von Kirkland [67] auf Seite 46 vertretenden Ansicht ist es für diese Zerlegung in sukzessive, eindimensionale FFT's nicht notwendig, daß das xy-Koordinatensystem ein orthogonales Koordinatensystem ist. Da der Vektor  $\boldsymbol{\rho} = (x, y)$  aus dem Ortsraum und der Vektor  $\mathbf{k} = (k_x, k_y)$  aus dem FOURIER-Raum ist, so gilt in jedem Koordinatensystem:

$$\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\rho} = k_x \cdot x + k_y \cdot y.$$

Denn wenn  $\mathbf{g}_j$  eine (kovariante) Basis im Ortsraum, und  $\mathbf{g}^j$  die zugehörige (kontravariante) Basis im FOURIER-Raum ist, so gilt immer:

$$\mathbf{k} \cdot \boldsymbol{\rho} = k_j \mathbf{g}^j \cdot \rho^n \mathbf{g}_n = k_j \rho^j.$$

## F.2 Lage und Orientierung der Koordinatensysteme

Durch die wrap-around-Anordnung der Elemente liegt im zweidimensionalen Fall der Koordinatenursprung für die direkte FOURIER-Transformation in der linken oberen Ecke, wenn die x-Achse nach unten und die y-Achse nach rechts zeigt. Ein Koordinatensystem mit genau dieser Richtungskonvention findet in der Kristallographie Verwendung. Es wird ferner auch durch die Art der Bildausgabe eines Graphikprogrammes – Zeilenweise von oben nach unten – nahegelegt. Für Ortsraum ist das auch die vom Betrachter erwartete Anordnung der Bildelemente (Pixel). Der oben fortgelassene Phasenfaktor würde nun gerade den Koordinatenursprung in die Mitte verlegen. Genau das aber ist hier unerwünscht, womit die Fortlassung dieses Faktors im nachhinein gerechtfertigt wäre. Im Frequenz- oder

FOURIER-Raum aber erwartet der Betrachter die Nullfrequenz in der Bildmitte und nicht links oben im Bild, bzw. ein Bild mit wrap-around-Anordnung der Bildelemente. Diese wrap-around-Anordnung ist allerdings für die Funktionsweise der FFT essentiell. Andererseits muß man für Rechnungen im FOURIER-Raum, wie sie z. B. bei der Berechnung der Transmissionsfunktionen anfallen, die (Raum-) Frequenzen über das von der Mitte abzählende negative und positive Frequenzintervall laufen lassen. Beide Erfordernisse lassen sich einfach durch explizite periodische Fortsetzung unter einen Hut bringen, und zwar entweder vermöge der Sequenz

```

Do m=-Ny2+1,Ny2
  mm= m
  if (mm .lt. 0)    mm= mm+Ny

Do n=-Nx2+1,Nx2
  nn= n
  if (nn .lt. 0) nn= nn+Nx

  f (nn,mm)= ...
Enddo
Enddo

```

oder durch

```

Do m=0,Ny-1
  mm= m
  if (m .gt. Ny2)    mm= mm-Ny

Do n=0,Nx-1
  nn= n
  if (n .gt. Nx2) nn= nn-Nx

  f (n,m)= ...
Enddo
Enddo

```

worin  $Nx2 = Nx/2$  und  $Ny2 = Ny/2$  bedeuten.<sup>1</sup> Dadurch wird einerseits das Feld  $f$  den Erfordernissen der FFT gemäß gesetzt, und andererseits laufen die Raumfrequenzen von der Mitte ab über das gesamte positive und negative Frequenzintervall. Die Orientierung des Koordinatensystems im FOURIER-Raum ist dabei die gleiche wie diejenige im Ortsraum: Die  $k_x$ -Achse zeigt nach unten und die  $k_y$ -Achse nach rechts.

Einmal derart gefüllt, paßt die Anordnung der Bildelemente im Ortsraum zu derjenigen im FOURIER-Raum, und man muß lediglich einmal am Schluß für FOURIER-raum- oder Diffraktionsbilder die wrap-around-Anordnung der Bildelemente rückgängig machen, damit die Nullfrequenz in der Bildmitte zu liegen kommt.

<sup>1</sup>Man beachte gelegentlich, daß die Sequenz  $nn= n ; \text{ if } (nn.lt.0) \text{ } nn= nn+N$  innerhalb der durch die Schleife vorgegebenen Indexgrenzen äquivalent zu der Anweisung  $nn= \text{MOD}(N+n, N)$  ist.

### F.3 Schiefwinklige Koordinatensysteme & Geometriekorrektur

Wenn man schiefwinklige Koordinatensysteme in der Rechnung verwendet, muß man für die Bildausgabe die sich durch eine solche Wahl des Koordinatensystems ergebende Bildscherung wieder rückgängig machen. Daß die Wahl eines schiefwinkligen Koordinatensystems zu einer Bildscherung führt, folgt daraus, daß die einzelnen Bildpixel in einem unkorrigiert ausgegebenen Bild von jedem Graphikprogramm immer als quadratische Pixel auf dem Anzeigegerät (Bildschirm, Drucker, . . . ) ausgegeben bzw. als quadratische Pixel interpretiert werden. Wir müssen also zwecks Korrektur dieses Effektes diese ungewollte Bildscherung rückgängig machen. Zu dem Ende sind in der Figur F.1 die vorliegenden Verhältnisse exemplarisch dargestellt:

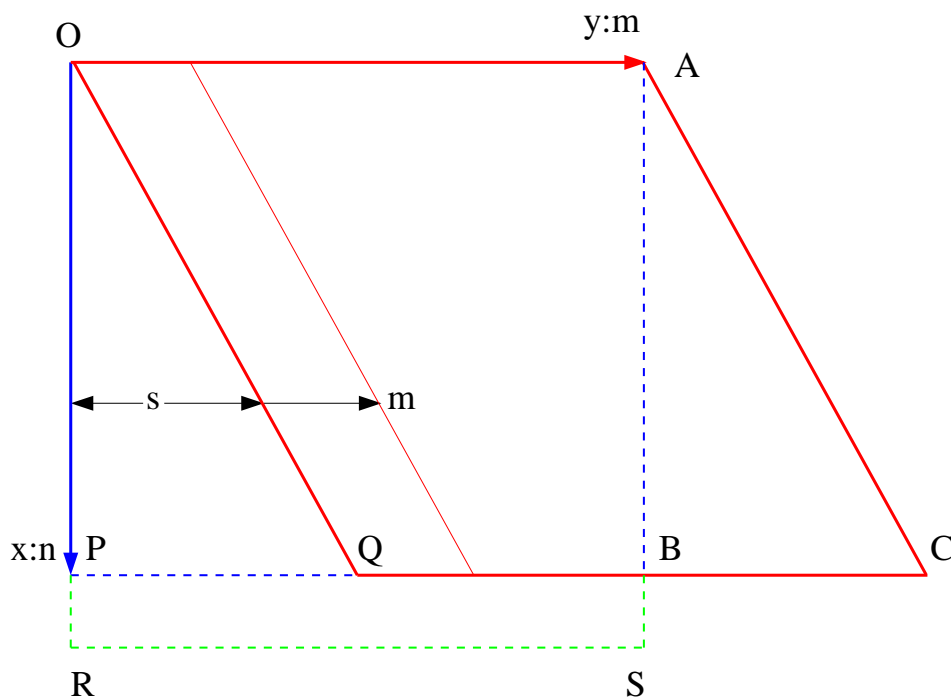


Abbildung F.1: Zur Korrektur von Bildscherung und Seitenverhältnis

Wenn  $(n, m)$  die Position eines gescherten Pixels im roten Viereck OQCA bezeichnet, so entspricht ihm der quadratische Pixel  $(n, m + s)$  im blauen Rechteck OPBA. Wenn ferner auf die Strecke OA  $M$  Punkte entfallen, so wird mit der Zuordnung  $(n, \text{Mod}(m + s, M))$  auch gleich dafür gesorgt, daß das Dreieck ABC an der richtig periodisch fortgesetzten Position OPQ im blauen Rechteck OPBA zu liegen kommt. Wenn wir mit  $\mathbf{a}$  und  $\mathbf{b}$  die Vektoren OQ und OA bezeichnen, mit  $a, b$  deren Längen, mit  $\varphi$  den von diesen beiden Vektoren eingeschlossenen Winkel, und wenn ferner  $N$  Punkte auf die Strecke OQ entfallen, so gilt  $s := s(n) = n \cdot a/N \cdot \cos \varphi \cdot M/b$ . Die Länge der Strecke OP ist dann gleich  $a \cdot \sin \varphi$ , sodaß auf sie nur  $N' = N \cdot a/b \cdot \sin \varphi$  quadratische Pixel entfallen würden. Die Bildmatrix enthält aber in der Richtung OP  $N$  Bildpunkte, sodaß das Bild in dieser Richtung gedehnt von dem Graphikprogramm dargestellt wird (grünes Rechteck ORSA), wenn man das Seitenverhältnis nicht korrigiert. Die Korrektur des Seitenverhältnisses erfordert eine (bilineare) Interpolation eines Bildes mit  $N \times M$  rechteckigen Pixeln auf ein Bild mit  $N' \times M$  quadratischen Pixeln (blaues Rechteck OPBA).

Für die Geometriekorrektur eines Diffraktionsbildes sind neben der Rückgängigmachung der FFT-wrap-around-Anordnung prinzipiell die gleichen Schritte notwendig, nur daß man

bei der Korrektur der Bildscherung darauf achten muß, daß sich die Bildmitte nicht verschiebt. Da ein elastisches Beugungsbild nur aus diskreten Punkten besteht, führt hier ferner eine automatische Korrektur des Seitenverhältnisses mittels bilinearer Interpolation zu keinem guten Ergebnis. Insbesondere ergeben sich dabei falsche Intensitätswerte für den Nullstrahl.

## F.4 NYQUIST-Frequenz und Antialiasing

Da sich die Raumfrequenzen zu gleichen Teilen auf negative und positive Frequenzen verteilen, ist mit

$$\nu_n = \frac{n}{N\Delta x}$$

die größte auftretende Raumfrequenz gleich

$$\nu_{\max} = \frac{1}{2\Delta x} = \frac{N}{2a}.$$

Diese Frequenz ist die sogenannte NYQUIST-Frequenz. Für die Situation im FOURIER-Raum wäre die entsprechende NYQUIST-„Frequenz“ im Ortsraum gleich  $\frac{a}{2}$ .

Bei vorgegebener Matrixgröße  $N$  ergeben diese NYQUIST-Frequenzen die folgende Forderung:

- Ersetzt man die kontinuierliche FOURIER-Transformation vom Orts- in den FOURIER-Raum auf dem unendlichen Intervall  $]-\infty, +\infty[$  durch eine diskrete N-Punkt FOURIER-Transformation auf dem endlichen Intervall  $[-a/2, +a/2]$ , so müssen die eingehenden Funktionen bei den Frequenzen  $N/2a$  (im FOURIER-Raum) und  $a/2$  (im Ortsraum) auf Null abgefallen sein.

Sonst tritt das sogenannte Aliasing auf, d. h. die zu großen Frequenzen werden in den Nutzfrequenzbereich gespiegelt. Das führt zu einer Verfälschung des Rechenergebnisses. Insbesondere kann bei Vorliegen von Aliasing eine reelle Funktion einen falschen Imaginärteil bekommen, sodaß also die Relation  $f^*(s) = f(-s)$  nicht mehr erfüllt ist. Beim (idealen) elastischen Multislice-Verfahren führt ein solcher falscher Imaginärteil dazu, daß die Bildintensität vom Sollwert eins nach unten oder oben abweicht.

## F.5 Faltungsintegrale und Antialiasing

Wenn für den Propagationsschritt im elastischen Multislice-Verfahren die schnelle FOURIER-Transformation verwendet wird, gibt es allerdings noch eine weitere Quelle für Aliasingeffekte.

Da über diesen Punkt gelegentlich seltsame Ansichten bestehen<sup>2</sup> seien zur Klärung der Verhältnisse die folgenden Relationen explizite angeschrieben:

Im FFT-Multislice-Verfahren wird ein kontinuierliches Faltungsintegral der Form

$$q(\rho) = \int f(\rho - x) p(x) dx \quad \xrightarrow{\mathcal{F}} \quad q(s) = f(s) p(s)$$

<sup>2</sup>siehe das in [23], im Abschnitt 3 zum dort sogenannten TT-Verfahren Gesagte.

durch Diskretisierung und Anwendung der FFT auf die beiden Summanden berechnet

$$q_n := q(n\Delta) = \sum_{j=0}^{N-1} f(\{n-j\}\Delta - a/2) p(j\Delta) \Delta,$$

bzw. wenn wir den multiplikativen Faktor  $\Delta$  weglassen und die so entstehende Summe weiterhin mit  $q_n$  bezeichnen<sup>3</sup>:

$$q_n = \sum_{j=0}^{N-1} f_{n-j} p_j \xrightarrow{\text{FFT}} Q_k = F_k P_k.$$

Diese diskrete FFT-Faltung ist allerdings nicht identisch mit dem gewünschten Ergebnis, denn erstens ist hierbei vorausgesetzt, daß die eingehenden Funktionen die Periode  $N$  haben, d. h. , daß z. B.  $p_{-j} = p_{N-j}$  gilt, und zweitens ist eben darum diese FFT-Faltung eine sogenannte zyklische Faltung, bei der die verschiedenen Perioden im Faltungsergebnis  $q_n$  einander überlappend addiert werden. Wenn man die diskrete Faltung zur Approximation der kontinuierlichen Faltung verwenden will, so muß man **zwingend** dafür sorgen, daß diese Überlappung oder Interferenz verschiedener Perioden nicht auftritt. Offenbar tritt diese Überlappung dadurch auf, daß die Indextdifferenz  $n - j$  bei der diskreten Faltung, oder die Indexsumme  $n + j$  bei der diskreten Korrelation, den doppelten Wert der Periode  $N$  annehmen kann. Damit diese doppelte Periode in eine Matrix der Kantenlänge  $N$  paßt, muß man die maximal auf einer Matrix dieser Größe darstellbare Frequenz<sup>4</sup> von  $N/2$  vermöge einer Bandbegrenzung  $B$  so begrenzen, daß  $B \cdot (2N) \stackrel{!}{=} N$  ist. Die Bandbegrenzung  $B$  muß also gleich  $1/2$  gewählt werden, damit alle  $N$  durch zyklische Faltung erhaltenen Matrixelemente gültige, nicht durch Überlappung verfälschte Werte haben. Wenn man sich diese Verhältnisse genauer betrachtet, so sieht man, daß noch keine verfälschende Interferenz der Werte zweier benachbarter Perioden auftritt, wenn man  $B \leq 2/3$  wählt. Denn die hierbei im äußeren Sechstel auftretenden Interferenzen sind unschädlich, da sich hierbei das äußere Drittel der beiden zu faltenden Funktionen überlappt. Die von dort herkommenden Beiträge sind aber wegen der Bandbegrenzung auf  $2/3$  der Maximalfrequenz 0, bzw. werden durch die Bandbegrenzung wieder auf 0 gesetzt.

---

<sup>3</sup>Denn setzt man linker Hand

$$p_j = \frac{1}{N} \sum_{k=0}^{N-1} P_k \exp \left\{ -i \frac{2\pi}{N} k j \right\}, \quad f_{n-j} = \frac{1}{N} \sum_{l=0}^{N-1} F_l \exp \left\{ -i \frac{2\pi}{N} (n-j) l \right\}$$

ein, so erhält man zunächst

$$q_n = \frac{1}{N^2} \sum_{k,l=0}^{N-1} F_l P_k \exp \left\{ -i \frac{2\pi}{N} l n \right\} \sum_{j=0}^{N-1} \exp \left\{ -i \frac{2\pi(k-l)}{N} j \right\}.$$

Da wegen

$$\sum_{j=0}^{N-1} \exp \left\{ -i \frac{2\pi(k-l)}{N} j \right\} = \frac{\sin(k-l)\pi}{\sin(k-l)\frac{\pi}{N}} e^{-i(N-1)(k-l)\frac{\pi}{N}} = N \delta_{k,l}$$

die Summe über  $l$  nur den Term zu  $l = k$  enthält, wird daraus:

$$q_n = \frac{1}{N} \sum_{k=0}^{N-1} F_k P_k \exp \left\{ -i \frac{2\pi}{N} k n \right\} = \frac{1}{N} \sum_{k=0}^{N-1} Q_k \exp \left\{ -i \frac{2\pi}{N} k n \right\}.$$

<sup>4</sup>Der Einfachheit halber sei hier  $a = 1$  gesetzt.

Um zu gewährleisten, daß keine verfälschenden Interferenzen auftreten, muß man erstens bei der Berechnung der Transmissions- und Fresneelfunktionen des Multislice-Verfahrens die maximale Abtastrate auf  $B$ -mal der maximal auf einer Matrix der Größe  $N$  möglichen Frequenz beschränken, wobei diese Beschränkung durch die zyklische Faltung erzwungen wird. Zweitens können in Folge der Multislice-Propagation in den Matrizen größere Frequenzen als  $B \cdot N/2$  auftreten. Da man es unbedingt vermeiden muß, daß die zyklische Faltung die „Nutzfrequenzen“ verfälscht, ist hier das kleinere Übel, diese zu großen Frequenzen per Tiefpassfilter in jedem Schritt des Multislice-Verfahrens herauszufiltern. Diese Filterung zeigt sich dann daran, daß beim elastischen Multislice-Verfahren die Gesamtintensität unter den Sollwert 1 absinkt.

Daraus ergibt sich:

Damit das FFT-Multislice-Verfahren funktioniert, müssen die eingehenden Funktionen schon für Frequenzen  $B \cdot N/2a$  auf 0 abgefallen sein. Bei vorgegebener Matrixgröße  $N$  ergeben also die NYQUIST-Frequenzen und die Bandbegrenzung zusammen die folgende Forderung:

- Berechnet man ein kontinuierliches Faltungsintegral im Ortsraum auf dem unendlichen Intervall  $]-\infty, +\infty[$  durch diskrete  $N$ -Punkt FOURIER-Transformationen auf dem endlichem Intervall  $[-a/2, +a/2]$ , so müssen die eingehenden Funktionen bei den Frequenzen  $B \cdot \frac{N}{2a}$  (im FOURIER-Raum) und  $\frac{a}{2}$  (im Ortsraum) auf 0 abgefallen sein.
- Darin gilt für die Bandbegrenzung  $B \leq 2/3$ , wenn man dafür sorgt, daß in jedem Schritt die zu großen Frequenzen entfernt werden.

Da ferner diese, wie wir sahen, unbedingt notwendige Bandbegrenzung ggf. zu einem Abschneiden zu großer Frequenzen führt, sollte man die Bandbegrenzung rotationssymmetrisch durchführen, da sie ansonsten eine, i. allg. von der Symmetrie des Objektes verschiedene, quadratische Symmetrie in die Rechnung einführt. Streng genommen sind wegen dieser Bandbegrenzung die Rechenergebnisse also falsch, wenn die Intensität unter den Sollwert 1 abfällt, auch wenn die erhaltenen Bilder qualitativ in Ordnung erscheinen. Allgemein hält man Ergebnisse, bei denen die Intensität  $I_n$  des  $n$ -ten Scheibchens im Intervall  $0.95 < I_n \leq 1$  liegt, für gültig. Die für einen Vergleich der Simulationsergebnisse mit realen Verhältnissen ohnehin erforderlichen Debye-Waller bzw. Temperaturfaktoren sind hier zur Erfüllung dieser Anforderungen sehr hilfreich.

## F.6 FFT-Implementierungen

Für die praktische Implementierung des inelastischen Multislice-Verfahrens ist es wichtig eine Implementierung des diskreten FFT-Algorithmus, d. h. einen Algorithmus zur effizienten Berechnung von Summen der Form

$$F_n = \sum_{j=0}^{N-1} f_j \omega_N^{nj},$$

zu verwenden, der so schnell wie möglich arbeitet. In früheren Zeiten konnte dieses Ziel einfach dadurch erreicht werden, daß man den Berechnungsaufwand der beiden einfachst

möglichen, nichtrekursiven FFT-Implementierungen<sup>5 6</sup>

Subroutine fft2(f,N)

C	DIT: Cooley-Tukey  Radix= 1  10 Continue Block= Radix if (Block.ge.N) Return  Radix= 2*Block Do k= 1, Block w= exp(i*Pi*(k-1)/Real(Block)) Do i= k,N,Radix j = i+ Block tmp = f(j)*w f(j)= f(i)-tmp f(i)= f(i)+tmp Enddo Enddo Goto 10  End	DIF: Sande-Tukey    Block= N    Radix = Block   if (Radix.lt.2) Return    Block= Radix/2    tmp = f(i)-f(j)   f(i)= f(i)+f(j)   f(j)= tmp*w
---	---	--

weiter reduzierte, indem man die Schleifen „aufrollt“, sodaß sie nicht ganz herunter bis zu Block=1 bzw. von Block=1 ab herauf laufen<sup>7</sup>, sondern nur bis Block=2, 4, ... . Denn diese kleinen Transformationen haben einfache, trigonometrische Faktoren. Insbesondere sind für die Radix-4 FFT diese Faktoren 0,  $\pm 1$ ,  $\pm i$ . Dadurch verringert sich die Anzahl der insgesamt durchzuführenden Floatingpoint-Multiplikationen und Additionen, und damit, wenn diese Floatingpoint-Operationen sehr zeitaufwendig sind, der Zeitbedarf der Rechnung. Diese Anzahl der Floatingpoint-Operationen ist auf heutigen Rechnern zwar kein gutes Maß für die Effizienz einer FFT-Implementierung, trotzdem sind diese höheren Radix-r Blöcke, sorgfältig implementiert, ein Schlüssel dazu. Die im Buch von Kirkland [67] auf den Seiten 56-62 enthaltene Sande-Tukey Radix-8 FFT ist z. B. musterhaft für eine FFT-Implementierung aus den Zeiten der Skalarrechner, die auf heutigen Rechnern enttäuschend

<sup>5</sup>DIT: Decimation in time, DIF: Decimation in frequency. Die DIF-FFT ist gewissermaßen  $N$ -mal das Inverse der DIT-FFT, wenn man in dieser  $w$  durch  $\bar{w}$  ersetzt. Ferner ist das Feld  $f$  beim Cooley-Tukey Algorithmus vorher in die sogenannte Bit-Umkehranordnung („bit-reversal“) zu bringen bzw. zu permutieren, beim Sande-Tukey Algorithmus liegt  $f$  anschließend in der Bit-Umkehranordnung vor. Die Bezeichnungen DIF und DIT zeigen also an, auf welcher Seite diese Bit-Umkehranordnung vorliegt bzw. anzuwenden ist.

<sup>6</sup>Hieraus kann man ferner jenen Faktor 5 in der Formel für die Anzahl der Rechenoperationen einer eindimensionalen Radix-2 FFT entnehmen: Im DIT-Algorithmus wird die innerste Schleife im ersten Schritt  $N/2$ -mal durchlaufen. Im zweiten Schritt gibt es zwei Blöcke mit je  $N/4$  Durchläufen der innersten Schleife usw. Man kommt also insgesamt auf  $N/2 \cdot \log_2 N$  Durchläufe der innersten Schleife. In der innersten Schleife hat man in jedem Schritt eine komplexe Multiplikation und zwei komplexe Additionen, also insgesamt  $(4 + 2) + 2 \cdot 2 = 10$  Rechenoperationen durchzuführen. Das ergibt jenen Vorfaktor 5. Man zählt dabei also z. B. auch Multiplikationen mit dem trivialen Faktor 1 mit. In jedem Schritt enthält der erste Block ausschließlich diesen trivialen Faktor. Man kann ihn gesondert behandeln und somit diese Multiplikationen einsparen.

<sup>7</sup>sogenannte Radix-2, oder auch base-2 FFT.



langsam abläuft, weil ihre Radix- $r$  Blöcke zwar sehr klar, aber ungünstig komponiert sind.<sup>8</sup> Das hat drei Gründe:

- Der Aufbau der kleinen Radix- $n$  Transformationsblöcke wird schnell ziemlich verwickelt. Die Rechengeschwindigkeit einer FFT-Implementierung hängt aber entscheidend davon ab, daß diese Kode-Sequenzen effizient implementiert sind. Die heutigen Compiler leisten zwar beim Optimieren Erstaunliches, aber man muß sie hierbei auf der Hochsprachenebene kräftig unterstützen. Denn obwohl alle Kompositionen einer solchen Kode-Sequenz aus den gleichen Daten die gleichen Teilergebnisse erzeugen, hängt die erzielbare Rechengeschwindigkeit von dem konkreten Aufbau dieser Sequenzen auf Hochsprachenebene (Fortran, C) ab. Die Compiler sind eben noch weit davon entfernt perfekt zu sein. Allerdings sollte man dabei darauf achten, keine „unnatürlichen“ Optimierungen vorzunehmen, wie z. B. ein sorgfältiges Arrangieren von Anweisungen für spezifische Prozessoren und Compiler Kombinationen.<sup>9</sup>
- Beim Blick auf die obigen Radix-2 FFT-Implementierungen fällt auf, daß die innerste Schleife in großen Sprüngen durch das zu transformierende Feld wandert. Wie im Anhang E geschildert, ist das im Hinblick auf die Cache-Gängigkeit einer solchen Routine extrem ungünstig. Es handelt sich hierbei um eine typische Optimierung für Skalarrechner, auf denen der Zeitbedarf für Floatingpoint-Operationen wesentlich größer ist als der für Speicherzugriffe bzw. Rechner ohne Speicherhierarchien: Man möchte in der innersten Schleife die trigonometrischen Drehfaktoren  $w$  nicht andauernd erneut ausrechnen. Was in diesem Fall, wo die FFT-Implementierung nicht auf eine vorausberechnete Tabelle mit diesen Drehfaktoren zurückgreift, vollständig in Ordnung geht<sup>10</sup>, ist völlig unverständlich in dem Fall, wo die FFT-Implementierung auf eine solche Tabelle zurückgreifen kann.<sup>11</sup> Diese oben angegebene Reihenfolge der beiden innersten Schleifen ist nämlich keinesfalls notwendig. Man kann die Reihenfolge der beiden innersten Schleifen mit geringem zusätzlichen (Rechen-)Aufwand auch vertauschen. Zusammen mit einer vorausberechneten Tabelle von Drehfaktoren  $w$  hat man so die zweite Ingredienz für eine effiziente FFT-Implementierung.<sup>12</sup>
- Drittens hat man noch gewisse Freiheiten in der Komposition der solcherart optimierten Radix- $n$  Transformationsblöcke. Auch hier hängt die erzielbare Rechengeschwin-

<sup>8</sup>Kirkland's darauf aufbauende 2d-FFT-Implementierung `fft2d` ist aber wesentlich besser, als die 2d-FFT-Implementierung in Stadelmann's EMS Programm. Der Aufbau dieser Routinen ähnelt stark derjenigen aus dem Buch von Brigham [18] in Kapitel 8.8 und 11.2. Das Stadelmann hier die 1d-FFT in die 2d-FFT direkt einfügt, macht diesen Speicherschieß-Algorithmus auch nicht besser. Die Auswirkungen die das hat sind in der Tabelle E.4 auf Seite 140 klar ersichtlich. Stadelmann's 2d-FFT schafft für  $N = 512$  lediglich 30.1 MFlops auf dem K7-600, Kirkland's Routine kommt immerhin auf 92.6 MFlops.

<sup>9</sup>Die FFT von J. Green ist ein Beispiel dafür. Der Autor hat sie spezifisch für PowerPC Prozessoren optimiert. Sie läuft denn auch überraschend gut auf dem zum PowerPC Prozessor ähnlichen POWER Prozessor. Aber schon nicht mehr gut auf dem Alpha Prozessor.

<sup>10</sup>Das Berechnen der Drehfaktoren in der innersten Schleife ist mit wesentlich mehr Zeitaufwand verbunden, als man durch die bessere Cache-Gängigkeit gewinnen kann, wenn man die Reihenfolge der Schleifen umdreht.

<sup>11</sup>In dem Software Development Kit von AMD (<http://www.amd.com/swdev/swdev.htm>) vom Juni 1999 findet sich z. B. in der für AMD-Prozessoren optimierten Mathematik Bibliothek (`dsp_lib.c`) eine Assemblerimplementierung einer Standard Radix-2 FFT, die eine solche Drehfaktortabelle nutzt und in der die Schleifen diese ungünstige Reihenfolge haben.

<sup>12</sup>Was diese Drehfaktortabelle angeht, sollte man nicht, wie in der älteren Literatur gelegentlich herausgestrichen, mit dem Speicherplatz knausern. Das verkompliziert nicht nur die Adressierung der benötigten Drehfaktoren eines Schrittes, schlimmer ist jedoch, daß das Vertauschen der Schleifenreihenfolge unter diesen Bedingungen nichts bringt, da man hier genötigt wird, in zunehmend größeren Abständen auf eine solche Drehfaktortabelle zuzugreifen.

digkeit von deren konkreten Anordnung auf Hochsprachenebene ab.

Da die im Quellcode frei erhältlichen FFT-Programme auf heutigen Rechnern nur eine mäßige Rechengeschwindigkeit besitzen, hat man natürlich auch anderen Ortes bemerkt. Konkret ist aus dieser Beobachtung 1996-1999 das fftw-Projekt entstanden [40]. Es ist gewissermaßen die ganz große Lösung. Allein der Quellcode der Complex-nach-Complex FFT-Implementierung umfaßt über 34000 Zeilen in der Programmiersprache C. Von diesen wurden jedoch nur rund 5000 tatsächlich von Hand kodiert. Die restlichen rund 30000 Zeilen bestehen aus automatisch generierten Radix-n Transformationsblöcken. Dadurch haben die Autoren den obigen ersten Punkt automatisiert. Betreffs des dritten Punktes gilt für die fftw, daß sie nicht einen einzigen FFT-Algorithmus implementiert, sondern jene Radix-n Transformationsblöcke auf vielfältige Art und Weise miteinander kombinieren kann.

Aus der im zweiten obigen Punkt geschilderten Sachlage betreffs der schlechten Cache-Gängigkeit der frei erhältlichen FFT-Programme haben die Autoren jedoch den Schluß gezogen, daß eine rekursive Implementierung des FFT-Algorithmus einer schleifen-basierten, nichtrekursiven Implementierung bezüglich der Cache-Gängigkeit überlegen ist [40]. Betrachtet man sich zu dem Ende nämlich die folgende Figur F.2

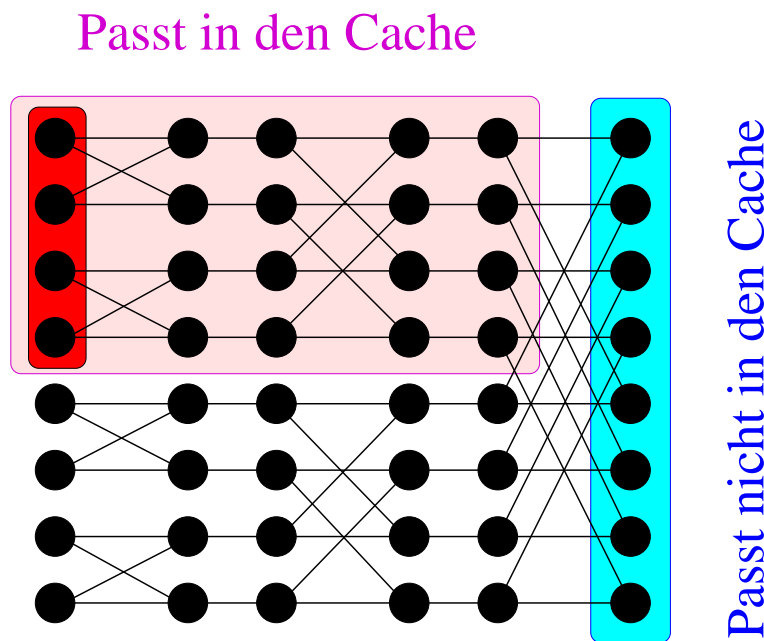


Abbildung F.2: FFT Schmetterling (Butterfly)

und bedenkt man dabei den Umstand, daß bei einer schleifen-basierten, nichtrekursiven Implementierung in jedem der  $\log_2 N$  Schritte<sup>13</sup> auf das ganze zu transformierende Feld  $f$  zugegriffen wird, so scheint das zunächst zuzutreffen. Dabei übersieht man allerdings, daß bei der rekursiven Implementierung jetzt in jedem der  $\log_2 N$  Schritte auf das ganze Feld mit den Drehfaktoren zugegriffen wird. In einem Radix-n Transformationsblock ist nun jeweils der erste Drehfaktor gleich 1. Man wird ihn also nicht in das Drehfaktorfeld mit aufnehmen.<sup>14</sup> Das ergibt dann lediglich einen Vorteil von  $(Radix-1)/Radix$  der rekursiven Implementierung gegenüber der nichtrekursiven Implementierung bezüglich der Cache-Gängigkeit. Dem steht aber ein höherer dynamischer Aufwand durch die Rekursion

<sup>13</sup>für  $N = 8$  also die hier dargestellten drei Schritte.

<sup>14</sup>Als Nebeneffekt kann man dadurch diese Drehfaktoren  $w$  in einem Feld unterbringen, welches nicht mehr als  $N$  Elemente belegt und auf das linear zugegriffen werden kann.

gegenüber und so ist denn solch eine rekursive FFT-Implementierung in praxi nicht unbedingt schneller als eine konventionelle, schleifen-basierte, nichtrekursiven Implementierung. Insbesondere dann nicht, wenn man bei diesen den ersten und dritten Punkt sorgfältig berücksichtigt.

Mit der folgenden Figur F.3 wird dies verdeutlicht:

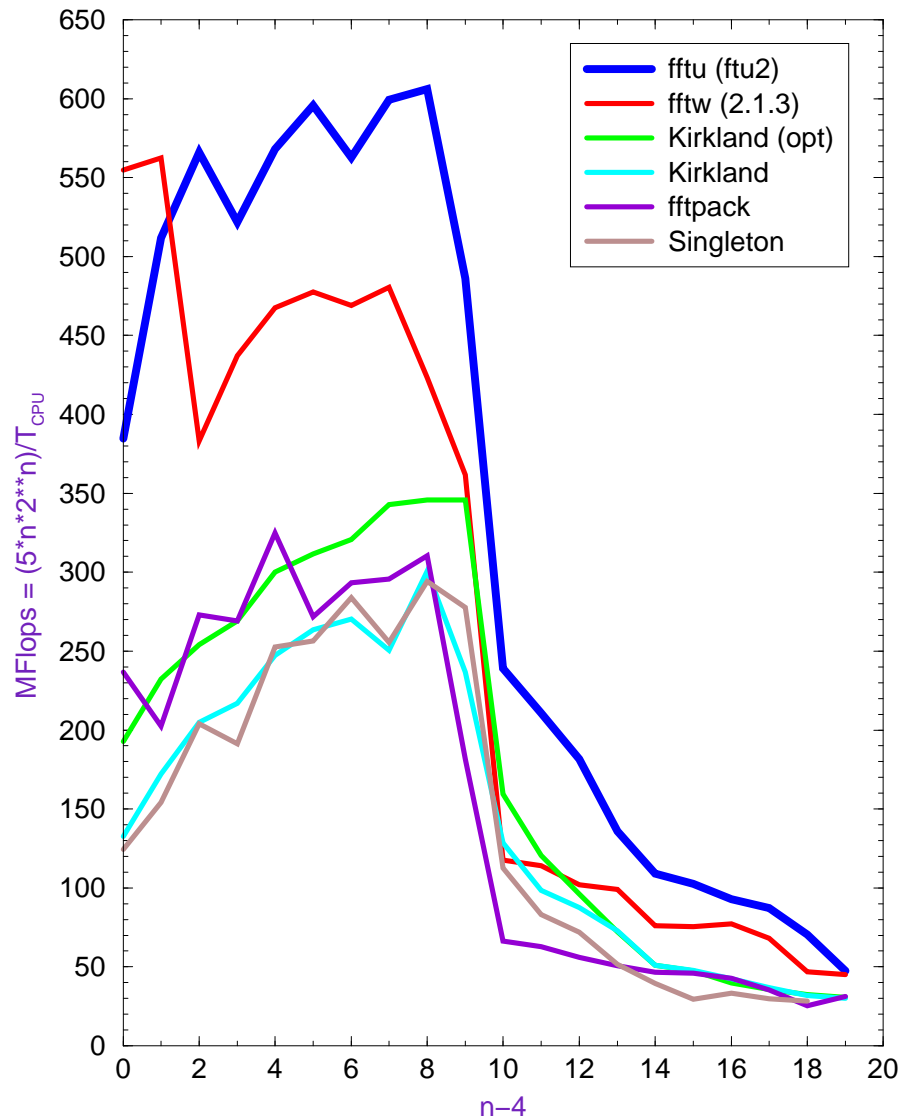


Abbildung F.3: Vergleich der Rechenleistungen verschiedener eindimensionaler FFT Implementierungen für einfach genaue komplexe Zahlen auf einem 600 MHz AMD-K7 (Athlon; Modell 1) Rechner der ersten Boardgeneration: FIC SD11, Chipsatz: AMD-Irongate Rev. C4 (=23h), Hauptspeicher-Timing: PC-100, 3,2,2,7,5,64,16 (cl,rp,rcd,rc,ras,ph,ic). Als Compiler wurde der g77/gcc-2.95.2 verwendet.

Darin sind hier ferner die Werte für die weithin bekannten Netlib FFT-Programme fftpack [122] und Singleton [116] nebst dem des FFT-Programms von Kirkland [66] mit aufgenommen. Da die hier dargestellten Werte dem Mittelwert aus den Rechenleistungen der direkten und der inversen FFT entsprechen, wurde Kirkland's FFT um eine nativ inverse Fassung ergänzt, in der die Vorzeichen der Drehfaktoren der direkten Transformation umgedreht wurden. In der mit „Kirkland (opt)“ bezeichneten Routine wurde lediglich die erste der obigen Ingredienzien einer effektiven FFT-Implementierung berücksichtigt. Bei der *fftu* wurden alle drei obigen Punkte berücksichtigt, und ferner in der Fassung *ftu2* der *fftu*

der Mangel an verfügbaren CPU-Registern bei ia32-CPU's. Man sieht im übrigen auch, daß die Rechenleistung für ein  $N$  einbricht, welches nur der halben L1-Cache Größe entspricht. Das liegt daran, daß das Drehfaktorfeld, wie in Fußnote 14 erwähnt, ebenfalls aus  $N$  Elementen besteht. Allerdings überlagert sich hier dieser Effekt mit dem Einbruch der Rechenleistung aufgrund des End-Radix-2 Blocks für  $N = 8192$ .

Für die Fälle  $N = 16$  und  $N = 32$  ist die *fftw* schneller als die Sande-Tukey Radix-8 FFT *fftu*. Die *fftw* ruft hier einfach nur einmal ihre entsprechenden Radix- $n$  Blöcke auf und ist fertig. Die Radix-8 FFT *fftu* muß demgegenüber diese Fälle aus einem Drehfaktor-Radix-8 Block und einem Radix-2 oder Radix-4 Block zusammensetzen. Sobald aber die *fftw* das Problem ebenfalls, und zwar rekursiv zerlegen muß, wendet sich das Blatt zugunsten der *fftu*. Insbesondere in den für das elastische wie inelastische Multislice-Verfahren wichtigen Fällen  $N = 256, 512, 1024$  und  $2048$ .<sup>15</sup>

## F.7 Anzahl der Rechenoperationen einer FFT

Die Formel der Anzahl der Rechenoperationen einer eindimensionalen, reinen Radix- $r$  FFT findet man entsprechend der Fußnote 6 auf Seite 148 wie folgt<sup>16</sup>:

Im  $p$ -ten Schritt des Verfahrens enthält der erste Radix- $r$  Block ausschließlich triviale Faktoren. Dieser möge  $b_r$  Rechenoperationen erfordern und die  $k - 1$  nichttrivialen Radix- $r$  Blöcke  $a_r$  Rechenoperationen. Darin ist  $k = N/r^p$  gleich der Länge der noch verbleibenden Sequenz. Jeder Schritt  $p$  des Verfahrens erfordert bei einem Datenfeld mit  $N$  Elementen  $N/rk$ -fache Anwendung dieser Radix- $r$  Blöcke. Damit erfordert ein Schritt  $p$  des Verfahrens

$$\frac{N}{rk} \{ (k - 1) a_r + b_r \} = \frac{N}{r} \left\{ a_r + \frac{b_r - a_r}{k} \right\}$$

Rechenoperationen. Da es nun  $q = \log_r N = \log_2 N / \log_2 r$  Schritte des Verfahrens gibt, erhält man durch Summation:

$$\text{Flops}_{\text{Radix-}r} = \frac{N}{r} a_r \tilde{q} - (a_r - b_r) \frac{r^{\tilde{q}} - 1}{r - 1} + \frac{N}{\tilde{s}} b_{\tilde{s}}.$$

Darin bedeuten:  $\tilde{q} = q - \delta_{0,s}$  und  $\tilde{s} = r \delta_{0,s} + 2^s (1 - \delta_{0,s})$  mit  $s = \text{mod}(\log_2 N, \log_2 r)$ . Diese Formel folgt aus der Annahme, daß man zunächst so viele Radix- $r$  Blöcke wie möglich durchführt. Wenn aber  $N$  nicht gleich  $r^q$  mit  $q$  ganz ist, so muß man am Schluß noch eine Radix- $\tilde{s}$  Block FFT mit  $N$  Elementen durchführen, welche nur triviale Faktoren enthält.<sup>17</sup> Auch wenn  $q$  ganz ist, enthält der letzte Transformationsschritt nur triviale Faktoren, da hier  $k = 1$  ist.

Die darin eingehenden Koeffizienten  $a_r$  und  $b_r$  können aus der nachfolgenden Tabelle F.1 entnommen werden.

Für  $r = 8$  und  $N = 512$  ist  $q = 3$  und  $s = 0$ , also  $\tilde{q} = 2$ ,  $\tilde{s} = 8$ , sodaß eine 512-er Radix-8 FFT 15750 echte Flops ausführt, während die Formel  $5N \log_2 N$  hierfür 23040 FFT-Flops ergibt.

Die gemäß der Formel  $5N \log_2 N$  berechneten 600 FFT-MFlops für  $N = 512$  entsprechen also etwa 410 echten MFlops. Das scheint also noch nicht so nahe am Chiplimit der FPU

<sup>15</sup>Dem entspricht  $n = 8, 9, 10$  und  $11$ .

<sup>16</sup>Man vergleiche dazu auch das FFT Gerüst auf Seite 155f.

<sup>17</sup>Sogenannte Mixed-Radix-FFT

r	$a_r$			$b_r$		
2	6	4	10	4	0	4
4	22	12	34	16	0	16
8	66	32	98	52	4	56
16	174	84	258	144	24	168
32	434	208	642	372	84	456
64	1038	500	1538	912	248	1160

Tabelle F.1: Anzahl der Rechenoperationen der Radix- $r$  Blöcke  $a_r$  und  $b_r$ . Die jeweils erste Spalte gibt die Anzahl der reellen Additionen, die zweite Spalte die reellen Multiplikationen und die dritte die Summe der reellen Additionen und Multiplikationen an. Es wurde dabei angenommen, daß jeder komplexen Multiplikation vier reelle Multiplikationen und zwei reelle Additionen entsprechen.

des 600 MHz AMD-K7 Prozessors von 600 MFlops<sup>18</sup>, als daß hier keine weiteren Verbesserungen möglich wären. Auch dann, wenn man bedenkt, daß in die Laufzeit  $T_{\text{CPU}}$  die Zeit für die anschließende Rückgängigmachung der Bit-Umkehrabbildung mit eingeht.<sup>19</sup> Schaltet man diese ab, so erreicht man etwa 685 FFT-MFlops was etwa 468 echten MFlops entspricht. Ein besser optimierender Compiler als der frei erhältliche GNU g77/gcc-2.95.2 Compiler kann hier also auch nicht mehr viel verbessern.

<sup>18</sup>In jedem CPU-Takt eine Multiplikation oder Addition, da die FPU des AMD-K7 voll „pipelined“ ist, sodaß bei dieser FPU im Idealfall in jedem Takt eine weitere Instruktion nachgeschoben werden kann, noch bevor die vorhergehende vollständig bearbeitet ist. Beim Intel-P6 oder P55C ist die Sachlage komplizierter, da dort zwar die Additionseinheit im Idealfall in jedem Takt eine Addition durchführen kann, die Multiplikationseinheit aber nur in jedem zweiten Takt. Hier muß also der Compiler für eine optimale Verzahnung von Multiplikationen und Additionen sorgen, was aber nicht immer möglich ist [47].

<sup>19</sup>Vgl. Fußnote 5 auf Seite 148.

```

* +-----+
*      Subroutine fft(f,W,Tab,N)
* +-----+
* .....
C Prinzipieller Aufbau einer Sande-Tukey Radix-r -fft
C fuer Intel-Cpu's

C N      : Problemgroesse
C f      : zu transformierendes Feld           : f(0:N-1)
C W      : Feld mit den Drehfaktoren           : W(0:*)
C Tab    : Hilfsfeld fuer (schnellere) Permutation : Tab(0:*)

C Es sei hier owBdA (ohne wesentl. Beschraenkung der Allgemeinheit)
C angenommen, das die Anzahl der zu transformierenden Punkte - die
C Dimension von f - gleich  $2^{**}N_p = \text{Radix}^{**}(N_p/\text{Radix})$  ist.  $N_p$  sei
C hier also ein ganzzahliges Vielfaches von  $\text{Radix} = \text{lb}(\text{Radix})$ .

C Beispiel: Radix=8 dh.  $\text{Radix} = 3$ ;  $N_p = 9$  dh.  $N = 512$ ,  $N_p/\text{Radix} = 3$ 
* .....

      Np      = log2n(N)
      Radix   = 2**Radixp
      tw_Offs = 0
      Knoten  = N

      Do p= 1, Np/Radixp-1
        Laenge= Knoten
        Knoten= Knoten/Radix

C  Anzahl der Bloecke:  $N/\text{Laenge} = N/(\text{Radix} * \text{Knoten})$ 
      Do Block= 0, N-1, Laenge
        Call Ftw_Radix(f(Block),W(tw_Offs),(Knoten))
      Enddo

      tw_Offs= tw_Offs+ (Radix-1)*(Knoten-1)
    Enddo

C  Letzter Pass: Spezial-Fall; Alle W trivial bzw. hardkodiert
      Call Ft_EndRadix(f,N)

C  Bit-Umkehranordnung rueckgaengig machen (DIF: Sande-Tukey)
      Call fft_Permut(f,Tab)

      Return
* +-----+
* +-----+
*      Subroutine Ftw_Radix(f,W,Knoten)
* +-----+
* .....
C Drehfaktor-Pass
* .....

C tmp0      ist hier ein Vektor mit Radix Komponenten

```

```

C Radix_W0 greift auf Radix Werte aus f im Abstand Knoten zu
C      Die Drehfaktoren sind hier alle hardkodiert bzw. 1

C Die hier ueberfluessig erscheinende temporaere Zwischen-
C speicherung ist notwendig, weil Radix_W0 alle Radix Werte aus f
C miteinander zu Radix neuen Werten kombiniert -- eine Radix fft
C durchfuehrt. Insbesondere besteht jede Komponente aus tmp0 aus
C einer Linearkombination von Radix Werten aus f.
C Die Zuweisung f(k)= tmp ist hier symbolisch zu verstehen: Weise
C die Radix Elemente aus tmp dem Feld f ab Offset k im Abstand
C Knoten zu.

C Temporaere Variable moeglichst nicht zweimal benutzen
      tmp0= Radix_W0(f(0),Knoten)
      f(0)= tmp0

      k    = 0
      Offs= 0

      Do Anz= 2, Knoten
        k    = k+ 1

C tmp      ist hier ein Vektor mit Radix Komponenten
C Radix_W greift auf Radix Werte aus f im Abstand Knoten zu
      tmp = Radix_W(f(k),Knoten,W(Offs))
      f(k)= tmp

      Offs= Offs+(Radix-1)
      Enddo

      Return
* +-----+
* +-----+
      Subroutine Ft_EndRadix(f,N)
* +-----+
* .....
C Ft_EndRadix(f,N) ist identisch mit dem Inhalt der Schleife im
C Haupt-Programm fuer p= Np/Radixp-1. Da dann Laenge gleich Radix
C und die Anzahl der Knoten gleich 1 ist, bedeutet das, dass hier
C die "Block"-Schleife in die Prozedur verlegt und die Schleife
C ueber Anz eliminiert wird.
* .....

      Do k= 0, N-1, Radix
C tmp0      ist hier ein Vektor mit Radix Komponenten
C Radix_W0 greift auf Radix Werte aus f im Abstand 1 zu
C      Die Drehfaktoren sind hier alle hardkodiert bzw. 1
      tmp0= Radix_W0(f(k),1)
      f(k)= tmp0
      Enddo

      Return
* +-----+

```

# Anhang G

## Abbreuaturen & nützliche Konstanten

Die für **YaMS** relevanten Werte nach CODATA [93]:

$$mc^2 = 510.998902 \quad \text{keV} \quad \text{Ruhenergie des Elektrons} \quad (\text{G.1})$$

$$\lambda_C = 2.426310215 \quad \text{pm} \quad \text{Compton-Wellenlänge des Elektrons} \quad (\text{G.2})$$

$$\alpha_s = 1/137.03599976 \quad \text{Feinstrukturkonstante} \quad (\text{G.3})$$

$$a_B = 0.5291772083 \quad \text{\AA} \quad \text{Bohrscher Radius} \quad (\text{G.4})$$

$$N_A = 6.02214199 \cdot 10^{23} \quad \text{1/Mol} \quad \text{Loschmidt-Zahl} \quad (\text{G.5})$$

Mit Hilfe der ersten vier Konstanten und den Beziehungen

$$\alpha_s = \frac{\alpha}{\hbar c}, \quad \lambda_C = \frac{h}{mc}, \quad a_B = \frac{\hbar^2}{m\alpha} \quad \text{und} \quad \alpha = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0}, \quad (\text{G.6})$$

worin  $\alpha$  die Coulomb-Wechselwirkungskonstante ist, lassen sich alle sonstigen von uns benötigten Faktoren bequem ausdrücken bzw. berechnen ( $E_0$  ist die kinetische Energie des Elektrons,  $E$  bezeichnet einen Energieverlust; zu  $\Theta_E$  s. Anhang A auf Seite 107):

$$\beta = \frac{v}{c} \quad (\text{G.7})$$

$$p = \hbar k = m\gamma v \quad (\text{G.8})$$

$$k = \frac{2\pi}{\lambda} \quad (\text{G.9})$$

$$\gamma = \frac{E_0}{mc^2} + 1 \quad (\text{G.10})$$

$$\gamma^2 = \left(1 + \frac{E_0}{mc^2}\right)^2 = 1 + \left(\frac{p}{mc^2}\right)^2 \quad (\text{G.11})$$

$$(\gamma\beta)^2 = \gamma^2 - 1 = \frac{E_0}{mc^2} (\gamma + 1) \quad (\text{G.12})$$

$$\lambda = \frac{\lambda_C}{\gamma\beta} = \frac{\lambda_C}{\sqrt{\frac{E_0}{mc^2} \cdot (\gamma + 1)}} \quad (\text{G.13})$$

$$\Theta_E = \frac{u}{1 + \sqrt{1 - u}} \quad \text{mit} \quad u = \left(\gamma - \frac{E}{2mc^2}\right) \cdot \frac{2}{\gamma + 1} \cdot \frac{E}{E_0} \quad (\text{G.14})$$

$$\approx \frac{\gamma}{\gamma + 1} \cdot \frac{E}{E_0} \quad \text{für} \quad E \ll E_0, \quad mc^2 \quad (\text{G.15})$$

$$(\text{G.16})$$



Zwei bestimmte Integrale<sup>1</sup>

$$\int e^{-\alpha s^2} e^{-\beta(q-s)^2} df_s = \frac{\pi}{\alpha + \beta} \exp \left\{ -\frac{\alpha\beta}{\alpha + \beta} q^2 \right\} = \int e^{-\alpha s^2} e^{-\beta(q+s)^2} df_s \quad (\text{G.17})$$

$$\int e^{-\alpha s^2 - bs} df_s = \frac{\pi}{\alpha} \exp \left\{ \frac{b^2}{4\alpha} \right\} \quad (\text{G.18})$$

Das Differential  $df_s$  bezeichnet darin ein Flächenelement und der Index, die Variable, nach der integriert wird. Entsprechend wird z. B. mit  $dV_r$  ein Volumenelement bezeichnet. Dieses Volumenelement bezieht sich dabei immer auf den ganzen, nicht notwendigerweise 3-dimensionalen Konfigurationsraum der Koordinaten  $r$ .

2- und 3-dimensionale Vektoren werden mit fetten Buchstaben bezeichnet:  $\rho, s, r, q, \dots$ .  $X, x$  bezeichnen die Gesamtheit der Ortsvektoren der Kerne und Elektronen des Objektes. Die Vereinigung beider bezeichnen wir inkonsequenterweise mit  $R = (X, x)$  (Vgl. insbes. Kap. 3), und die 3-dimensionalen Komponenten von  $X, x$  für die einzelnen Kerne und Elektronen mit  $X_l, x_{lk}$  (Vgl. Anhang B). Die Vektoren  $a, b$  und  $c = c e_z$  zur Kennzeichnung der Basis der Einheits- bzw. Superzelle werden in Anhang F.2 erklärt.

Zum leichteren Vergleich mit der Literatur seien hierher noch einige populäre Konstanten gesetzt:

$$\frac{m\gamma}{k\hbar^2} = 2\pi \frac{m\lambda}{\hbar^2} \gamma, \quad 4\pi\alpha \frac{m\gamma}{\hbar^2 k} = \frac{4\pi\alpha_S}{\beta}, \quad \frac{2}{a_B(4\pi)^2} = \frac{m\alpha}{2\hbar^2} \quad (\text{G.19})$$

Vorzeichenkonvention und Normierung der 2-dimensionalen FOURIER-Transformation

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{F}} \cdot &= \int df_\rho e^{+is\rho} \cdot, \quad \hat{\mathcal{F}}^- \cdot = \int \frac{df_s}{(2\pi)^2} e^{-is\rho} \cdot, \quad \hat{\mathcal{F}}^- \hat{\mathcal{F}} = \hat{\mathcal{F}} \hat{\mathcal{F}}^- = 1 \\ \hat{\mathcal{F}}_t \cdot &= \int dt e^{-i\omega t} \cdot, \quad \hat{\mathcal{F}}_t^- \cdot = \int \frac{d\omega}{2\pi} e^{+i\omega t} \cdot, \quad \hat{\mathcal{F}}_t^- \hat{\mathcal{F}}_t = \hat{\mathcal{F}}_t \hat{\mathcal{F}}_t^- = 1 \end{aligned} \quad (\text{G.20})$$

Diese Vorzeichenkonvention gilt auch für die 3-dimensionale, räumliche FOURIER-Transformation, es sei denn, im Text, wie z. B. in Kapitel 2.2, ist explizit die andere Vorzeichenkonvention zugrunde gelegt.

Verwendete Bezeichnungen für spezielle Funktionen (Kapitel 6.6 und 6.7):

$$F(a, b; z) \quad \text{konfluente hypergeometrische Funktion} \quad (\text{G.21})$$

$$L_l^n(z) \quad \text{zugeordnetes/verallgemeinertes Laguerre-Polynom} \quad (\text{G.22})$$

$$J_n(z) \quad \text{Besselfunktion} \quad (\text{G.23})$$

$$I_n(z) \quad \text{modifizierte Besselfunktion} \quad (\text{G.24})$$

$$E_1(z), \text{Ei}(z) \quad \text{Exponentialintegral} \quad (\text{G.25})$$

Bezüglich dieser Funktionen halten wir uns an die üblichen Bezeichnungen [3][46][70] und [118]. Die Bezeichnung für das Laguerre-Polynom folgt der Konvention in [3] und [46]. Mit  $\Re f$  wird wie in der Mathematik üblich der Realteil und mit  $\Im f$  der Imaginärteil einer Größe  $f$  bezeichnet.

Bei Größen, wie z. B.  $T_k^l(z_j; \rho)$  oder  $\{\alpha^s\}$  sind  $l$  und  $s$  normalerweise als Indizes zu deuten, und nicht, daß die entsprechende Größe etwa in die  $l$ -te bzw.  $s$ -te Potenz zu erheben ist. Da die Bedeutung wohl aus dem Zusammenhang klar ist, wurde hier auf eine so schwerfällige Notation wie  $\{\alpha^{(s)}\}$  verzichtet.

<sup>1</sup>Wenn nicht anders vermerkt, ist immer über das ganze, hier zweidimensionale Integrationsgebiet zu integrieren.

# Literaturverzeichnis

- [1] E. Abbe, Abhandlungen über die Theorie des Mikroskops, in: Gesammelte Abhandlungen von Ernst Abbe, Erster Band (1904). Reprint: Olms 1989.
- [2] F.F. Abraham, J.Q. Broughton, N. Bernstein, and E. Kaxiras, Spanning the Length Scales in Dynamic Simulations, Computers in Physics, Vol. 12, No. 6, Nov/Dec 1998.
- [3] M. Abramowitz, I.A. Stegun (eds.) (1984) Pocketbook of Mathematical Functions, H. Deutsch, Frankfurt/M. 1984.
- [4] J.G. Allpress, E.A. Hewat, A.F. Modie, J.V. Sanders (1972), Acta Cryst., **A28**, 528–536.
- [5] J.U. Andersen, E. Bonderup, R.H. Pantell (1983) Channeling Radiation, Ann. Nucl. Part. Sci. **33**, 453–504.
- [6] D.H. Bailey (1989) FFTs in External or Hierachial Memory, RNR Technical Report, RNR-89-004, December 30, 1989, NASA Ames Research Center.
- [7] D.H. Bailey (1993) RISC Microprocessors and Scientific Computing, RNR Technical Report, RNR-94-004, March 26, 1993, NASA Ames Research Center.
- [8] H. Bethe (1928) Theorie der Beugung von Elektronen an Kristallen, Ann. d. Phys. IV. Folge. **87**, 55–129.
- [9] H. Bethe (1930) Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie, Ann. d. Phys. **5**, 325–400.
- [10] A. Berger (1993) Dissertation, Institut für Angewandte Physik, TH Darmstadt (D17).
- [11] D.M. Bird and Q.A. King (1990) Absorptive Form Factors for High-Energy Electron Diffraction Acta Cryst. **A46**, 202–208.
- [12] J.M. Bijvoet, N.H. Kolkmeijer, C.H. MacGillavry (1940) Röntgenanalyse von Kristallen, Springer, Berlin.
- [13] M. Born (1926) Quantenmechanik der Stoßvorgänge, ZS. f. Phys. **38**, 803–827.
- [14] M. Born, R. Oppenheimer (1927) Zur Quantenmechanik der Molekeln, Ann. d. Phys. IV. Folge. **84**, 457–484.
- [15] M. Born (1943) Theoretical Investigations on the Relation between Crystal Dynamics and X-Ray Scattering, Rep. Prog. Phys. **9**, 294–333.
- [16] M. Born (1983) M. Born (1983) Physik im Wandel meiner Zeit, Vieweg, Facetten der Physik Bd. 9, Braunschweig, Aufsatz 23.

- [17] M. Born, K. Huang (1954) *Dynamical Theory of Crystal Lattices*, Oxford University Press, Reprint (1962).
- [18] E.O Brigham (1997) *FFT-Anwendungen*, R. Oldenburg Verlag.
- [19] P.R. Buseck, J.W. Cowley, L. Eyring (eds) (1988) *High-Resolution Transmission Electron Microscopy and Associated Techniques*, Oxford University Press, New York Oxford.
- [20] A. H. Compton (1930) The Determination of Electron Distributions from Measurements of Scattered X-Rays, *Phys. Rev* **35**, 925–938.
- [21] J.M. Cowley, A.F. Moodie (1957) The Scattering of Electrons by Atoms and Crystals. I. A New Theoretical Approach, *Acta Cryst.* **10**, 609–619.
- [22] Courant · Hilbert (1968) *Methoden der Mathematischen Physik*<sup>3</sup>, Springer, Heidelberger Taschenbücher Band 30.
- [23] J.H. Chen, D. Van Dyck, M. Op de Beeck, J. Van Landuyt (1997) Computational comparisons between the conventional multislice method and the third-order multislice method for calculating high-energy electron diffraction and imaging. *Ultramicroscopy* **69**, 219–240.
- [24] C. Windeck, Rasender Daten-Bus, Direct-Rambus soll Computer beschleunigen, c't 3/2000, 232–241, Magazin für Computertechnik, Verlag Heinz Heise, Hannover.
- [25] C. Windeck, Speicherriegel enträtselt, Wie Mainboards die Hauptspeicher-Zeitparameter einstellen (sollten), c't 17/2000, 166–173, Magazin für Computertechnik, Verlag Heinz Heise, Hannover.
- [26] C. Dinges and H. Rose (1995), Simulation of Filtered and Unfiltered TEM Images and Diffraction Patterns, *phys. stat. (a)* **150**, 23–30.
- [27] C. Dinges, A. Berger and H. Rose (1995) Simulation of TEM and STEM Images Considering Phonon and Electronic Excitations, *Ultramicroscopy* **60**, 49–70.
- [28] C. Dinges (1996) Dissertation, Institut für Angewandte Physik, TH Darmstadt (D17).
- [29] F. Distel (1932) Über das Gültigkeitsgebiet der Bornschen Theorie der Stoßprozesse, *ZS f. Phys.* **74**, 785–809.
- [30] P.A. Doyle and P.S. Turner (1968) Relativistic Hartree-Fock X-ray and Electron Scattering Factors. *Acta Cryst. A* **24**, 390–397.
- [31] J. Drenth (1994) *Principles of Protein X-ray Crystallography*, Springer-Verlag, New York, Berlin.
- [32] M. Eckert (1993) *Die Atomphysiker, Eine Geschichte der theoretischen Physik am Beispiel der Sommerfeldschule*, Vieweg.
- [33] P. Ehrenfest (1927) Bemerkungen über die angenäherte Gültigkeit der klassischen Mechanik innerhalb der Quantenmechanik, *ZS. f. Phys.*, 455–457.
- [34] P.P. Ewald (1965) Crystal Optics for Visible Light and X Rays, *Rev. Mod. Phys.* **37**, 1, 46–56.

- [35] C. Fanidis, D. Van Dyck, J. Van Landuyt (1992) Inelastic scattering of high-energy electrons in a crystal in thermal equilibrium with the environment. I. Theoretical framework, *Ultramicroscopy* **41**, 55–64.
- [36] E. Feenberg (1932) The Scattering of Slow Electrons by Neutral Atoms, *Phys. Rev.* **40**, 40–54.
- [37] R.P. Feynman (1948) Space-Time Approach to Non-Relativistic Quantum Mechanics, *Rev. Mod. Phys.* **20**, 2, 367–387.
- [38] H.A. Ferwerda, B.J. Hoenders, C.H. Slumph (1986) Fully relativistic treatment of electron-optical image formation based on the Dirac equation, *Optica Acta* **33**, 2, 145–157.
- [39] H.A. Ferwerda, B.J. Hoenders, C.H. Slumph (1986) The fully relativistic foundation of linear transfer theory in electron optics based on the Dirac equation, *Optica Acta* **33**, 2, 159–183.
- [40] Herunterladbare Artikel und Programme unter: <http://www.fftw.org> und: <http://netlib.org/transform>.
- [41] A.G. Fox, M.A. O’Keefe (1989) Relativistic Hartree-Fock X-ray and Electron Atomic Scattering Factors at High Angles, *Acta Cryst.* **A45**, 786–793.
- [42] K. Fujiwara (1959) Application of Higher Order Born Approximation to Multiple Elastic Scattering of Electrons by Crystals, *J. Phys. Soc. Japan* **14**, 11, 1513–1524.
- [43] K. Fujiwara (1961) Relativistic Dynamical Theory of Electron Diffraction, *J. Phys. Soc. Japan* **16**, 11, 2226–2238.
- [44] R. Glauber, V. Schomaker (1953) The Theory of Electron Diffraction, *Phys. Rev.* **89**, 4, 667–671.
- [45] R.J. Glauber (1958) High-Energy Collision Theory. In: *Lectures in Theoretical Physics*, Boulder Vol.1, Interscience, New York: 315–414.
- [46] I.S. Gradstein, I.M. Ryshik (1981)  $\Sigma\Pi\int$  Summen-Produkt- und Integral-Tafeln<sup>1</sup>, Vol.1/2, H. Deutsch, Frankfurt/M. 1981.
- [47] B. Greer, G. Henry (1997) High Performance Software on Intel Pentium Pro Processors or Micro-Ops to TeraFlops, SC-Technical Paper, Proceedings of Supercomputing 1997, <http://www.supercomp.org/sc97/proceedings>.
- [48] J. Green, FFT for RISC 1.21, [green\\_jt@VSDEC.NL.NUWC.NAVY.MIL](mailto:green_jt@VSDEC.NL.NUWC.NAVY.MIL).
- [49] L. Van Hove (1954) Correlation in Space and Time and Born Approximation Scattering in Systems of Interacting Particles. *Phys. Rev.* **95**, 1, 249–262.
- [50] *Handbuch der Physik*<sup>2</sup>, Band XXIV/1, Quantentheorie (1933), Springer, Berlin.
- [51] P.W. Hawkes, E. Kasper (1994) *Principles of Electron Optics*, Vol.3: Wave Optics, Academic Press, Harcourt Brace & Company, London.
- [52] W. Heisenberg (1930) *Physikalische Prinzipien der Quantentheorie*, BI Hochschultaschenbuch Bd. 1, Mannheim, 1958, 1983.

- [53] W. Heisenberg (1931) Über die inkohärente Streuung von Röntgenstrahlen, *Physik. Zeitschr.* **32**, 19, 737–740.
- [54] W. Heisenberg (1943) Die „beobachtbaren Größen“ in der Theorie der Elementarteilchen, *ZS. f. Phys.* **120**, 513–538, 673–702.
- [55] J.L. Hennessy & D.A. Patterson (1996), *Computer Architecture, A Quantitative Approach*, Second Edition, Morgan Kaufmann Publishers, Inc., San Francisco.
- [56] G. Herzog (1931) Streuung von Röntgenstrahlen an Argon, *ZS. f. Phys.* **69**, 207–234.
- [57] J.A. Hoerni (1956) Multiple Elastic Scattering in Electron Diffraction by Molecules, *Phys. Rev.* **102**, 6, 1530–1533.
- [58] J.A. Hoerni (1956) Multiple Elastic Scattering in Electron Diffraction by Crystals, *Phys. Rev.* **102**, 6, 1534–1542.
- [59] Ch. Huygens (1690) *Abhandlung über das Licht*. Ostwalds Klassiker der exakten Wissenschaften, Band 20, 4. Auflage, Reprint 1996, 2000, H. Deutsch, Thun, Frankfurt/M.
- [60] M. Inokuti (1971) Inelastic Collisions of Fast Charged Particles with Atoms and Molecules - The Bethe Theory Revisited, *Rev. Mod. Phys.* **43**, 3, 297–347.
- [61] K. Ishizuka, N. Uyeda (1977) A New Theoretical and Practical Approach to the Multislice Method, *Acta Cryst.*, **A33**, 740–749.
- [62] J.D. Jackson (1983) *Klassische Elektrodynamik*<sup>2</sup>, Walter de Gruyter, Berlin.
- [63] C.G.J. Jacobi (1847/48) *Vorlesungen über analytische Mechanik*, Berlin 1847/48, Reprint in: *Dokumente zur Geschichte der Mathematik*, Band 8, Vieweg 1996.
- [64] E.J. Kirkland, R.F. Loane and J. Silcox (1987) Simulation of Annular Dark Field STEM Images using a modified Multislice Method, *Ultramicroscopy* **23**, 77–96.
- [65] E.J. Kirkland, R.F. Loane, P. Xu, and J. Silcox (1989) Multislice Simulation of ADF-STEM and CBED Images, in: *Computer Simulation of Electron Microscope Diffraction and Images*, Ed. by W. Krakow and M. O’Keefe, The Minerals, metals & Materials Society, 13–31.
- [66] E.J. Kirkland (1995) A Set of Programs to Simulate Electron Images and Diffraction (CTEM, STEM, CBED) Using the Multislice Method, Cornell University, Ithaca, N.Y., Revision vom 21. September 1995, (pers. Kommunikation).
- [67] E.J. Kirkland (1998) *Advanced Computing in Electron Microscopy*. Plenum Press, New York.
- [68] H. Kohl, H. Rose (1985) Theory of Image Formation by Inelastically Scattered Electrons in the Electron Microscope, in: *Advances in Electronics and Electron Physics*, Vol. 65, 173–227.
- [69] H. Koppe (1948) Der Streuquerschnitt von Atomen für unelastische Streuung von schnellen Elektronen. *Z. Phys.* **124** 658–664.
- [70] L.D. Landau, E.M. Lifschitz (1985) *Lehrbuch der theoretischen Physik Band III*<sup>7</sup>: *Quantenmechanik*, Akademie Verlag, Berlin.

- [71] L.D. Landau, E.M. Lifschitz (1986) Lehrbuch der theoretischen Physik Band IV<sup>5</sup>: Quantenelektrodynamik, Akademie Verlag, Berlin.
- [72] L.D. Landau, E.M. Lifschitz (1984) Lehrbuch der theoretischen Physik Band V<sup>6</sup>: Statistische Physik Teil 1, Akademie Verlag, Berlin.
- [73] M. v. Laue (1926) Der Einfluß der Temperatur auf die Röntgenstrahlinterferenzen, Ann. d. Phys. IV. Folge. **81**, 877–905.
- [74] M. v. Laue (1936) Zur Theorie der Kikuchilinien, Ann. d. Phys. V. Folge. **25**, 569–576.
- [75] M. v. Laue (1944) Materiewellen und ihre Interferenzen, Akademische Verlagsgesellschaft, Leipzig.
- [76] M. v. Laue (1960) Röntgenstrahl-Interferenzen<sup>3</sup>, Akademische Verlagsgesellschaft, Frankfurt/M.
- [77] M. Lax (1951) Multiple Scattering of Waves, Rev. Mod. Phys. **23**, 4, 287–310.
- [78] F. Lenz (1957) Zur Streuung mittelschneller Elektronen in kleinste Winkel, Z. Naturforschg. **9a**, 185–204.
- [79] Linux-Magazin, Quantenchemie auf einem Linux-Cluster, 01/1999, Linux-Magazin Verlag, München.
- [80] B.A. Lippmann, J. Schwinger (1950) Variational Principles for Scattering Processes. I, Phys. Rev. **79**, 3, 469–480.
- [81] B.A. Lippmann, (1950) Variational Principles for Scattering Processes. II, Phys. Rev. **79**, 3, 481–486.
- [82] F. London (1932) Zur Theorie nicht adiabatisch verlaufender chemischer Prozesse, ZS. f. Phys. **74**, 143–174.
- [83] Kathleen Lonsdale (1943) Experimental Study of X-ray Scattering in Relation to Crystal Dynamics, Rep. Prog. Phys. **9**, 256–293.
- [84] I. Mandel, E. Wolf (1965) Coherence Properties of Optical Fields, Rev. Mod. Phys. **37**, 2, 231–287.
- [85] Eugen Merzbacher (1998) Quantum Mechanics, Third Edition, John Wiley & Sons, New York.
- [86] P.A. Thiessen, K. Molière (1939) Über den Einfluß der Absorption auf den Brechungseffekt der Elektronenstrahlen, I. Teil, Ann. d. Phys., 5. Folge, **34**, 461–472.
- [87] K. Molière (1939) Über den Einfluß der Absorption auf den Brechungseffekt der Elektronenstrahlen, II. Teil, Ann. d. Phys., 5. Folge, **34**, 461–472.
- [88] G. Molière (1947) Theorie der Streuung schneller geladener Teilchen I, Einzelstreuung am abgeschirmten Colomb-Feld, Z. Naturforschg. **2a**, 133–145.
- [89] P.M. Morse (1932) Unelastische Streuung von Kathodenstrahlen, Physik. Zeitschr., **33**, 443–445.
- [90] H. Müller, H. Rose & P. Schorsch (1998) A coherence function approach to image simulation, Journal of Microscopy, **190**, 73–88.

- [91] H. Müller, Dissertation 2000, Institut für Angewandte Physik, TH Darmstadt (D17).
- [92] J.I. Musher (1967) Approximate Wave Functions for Molecules and Crystals Using Perturbation Theory, *Rev. Mod. Phys.*, **39**, 1, 203–227.
- [93] P.J. Mohr and B.N. Taylor (1998) CODATA Recommended Values of the Fundamental Physical Constants, <http://www.physics.nist.gov/constants>
- [94] I. Newton (1717), *Opticks*<sup>2</sup>: or, a Treatise of the Reflexions, Refractions, Inflexions and Colours of Light, Übers., Edition Vieweg; Bd. 1, Vieweg, 1983. Auch: Ostwalds Klassiker der exakten Wissenschaften, Band 97, H. Deutsch, Thun, Frankfurt/M.
- [95] Numerical Recipes in FORTRAN (1992) Second Edition, Cambridge University Press, Reprint 1994.
- [96] H.J. Nussbaumer (1982) Fast Fourier Transform and Convolution Algorithms, Springer-Verlag, Second Edition, Second Printing 1990.
- [97] T. Ooura (1996-1999) Fortran/C FFT-Routinen, <http://momonga.t.u-tokyo.ac.jp/~ooura/fft.html>.
- [98] H. Ott (1935) Der Einfluß der Temperatur auf die Röntgenstreuung fester Körper nach der Quantenmechanik, *Ann. d. Phys.*, V. Folge., **23**, 169–196.
- [99] G. Placzek (1951) The Scattering of Neutrons by Systems of Heavy Nuclei, *Phys. Rev.* **86**, 3, 377–388.
- [100] G. Placzek, L. Van Hove (1953) Crystal Dynamics and Inelastic Scattering of Neutrons, *Phys. Rev.* **93**, 3, 103–110.
- [101] R.G. Parr, W. Yang (1989) Density-Functional Theory of Atoms and Molecules, Oxford University Press, N.Y.
- [102] A.L. Patterson (1927) Über das Gibbs-Ewaldsche reziproke Gitter und den dazugehörigen Raum, *ZS. f. Phys.*, 597–599.
- [103] G. Radi (1968) Unelastische Streuung in der dynamischen Theorie der Elektronenbeugung, *Z. Phys.*, **212**, 146–168.
- [104] E. Rietzel I. Angert, H. Müller, R.R. Schröder (1997), Untersuchungen zum Bildkontrast von Protein und DNA/RNA in gefrorenen hydratisierten Proben, 4. Dreiländertagung Regensburg.
- [105] E. Rietzel, P. Schorsch, H. Müller, R. Marabini, C. Sorzano, J.M. Carazo, U. Schimpf, C. Leue, K.C. Holmes, R.R. Schroeder (1998) Zero-loss P-contrast in EF-TEM, Proceedings of ICEM 14, Cancun, Mexico.
- [106] H. Rose Nonstandars Imaging Methods in Electron Microscopy, *Ultramicroscopy* **2**, 251–267.
- [107] H. Rose (1984) Information Transfer in Transmission Electron Microscopy, *Ultramicroscopy* **15**, 173–192.
- [108] H. Rose (1990) Skript zur Vorlesung *Bildentstehung im Elektronenmikroskop*, Wintersemester 1989/90.

- [109] H. Rose (1991) Skript zur Vorlesung *Beugung und Streuung von Elektronen*, Wintersemester 1990/91.
- [110] C.J. Rossouw, M.J. Whelan (1981) Diffraction Contrast Retained by Plasmon and K-Loss Electrons, *Ultramicroscopy* **6**, 53–66.
- [111] C.J. Rossouw (1985) Coherence in Inelastic Electron Scattering, *Ultramicroscopy* **16**, 241–254.
- [112] E. Ruska (1979) Die frühe Entwicklung der Elektronenlinsen und der Elektronenmikroskope, *Acta Historica Leopoldina, Deutsche Akademie der Naturforscher Leopoldina, Halle/Saale*.
- [113] L.I. Schiff (1956) Approximation Method for High-Energy Potential Scattering, *Phys. Rev.* **103**, 2, 443–453.
- [114] P. Schorsch, Diplomarbeit 1991, Institut für Angewandte Physik, TH Darmstadt (D17).
- [115] P.G. Self, M.A. O’Keefe, A.E.C. Spargo (1983), Practical Computation of Amplitudes and Phases in Electron Diffraction, *Ultramikroskopie* **11**, 35–52.
- [116] R.C. Singleton (1967) On computing the fast Fourier transform. *Comm. ACM* **10**, 647–654. Siehe: <http://netlib.org/go>, (go = Golden Oldies).
- [117] A. Sommerfeld (1958) Vorlesungen über Theoretische Physik, Band IV<sup>3</sup>: Optik, Reprint 1978, H. Deutsch, Thun, Frankfurt/M.
- [118] A. Sommerfeld (1965) Vorlesungen über Theoretische Physik, Band VI<sup>6</sup>: Partielle Differentialgleichungen der Physik, Reprint 1978, H. Deutsch, Thun, Frankfurt/M.
- [119] A. Sommerfeld (1978) Atombau und Spektrallinien, Band II, Reprint 1978, H. Deutsch, Thun, Frankfurt/M.
- [120] P.A. Stadelmann (1987) EMS - A Software Package for Electron Diffraction Analysis and HREM Image Simulation in Materials Science. *Ultramicroscopy* **21**, 131–146.
- [121] P.A. Stadelmann (1995) Image Calculation Techniques, Skript zum Vortrag vom 2. Feb. 1995.
- [122] P.N. Swarztrauber (1985) FFTPACK: A package of Fortran subprograms for the Fast Fourier Transform of periodic and other symmetric sequences, Siehe: <http://netlib.org/fftpack>.
- [123] C. Temperton (1992) A Generalized Prime Faktor FFT Algorithm for any  $N = (2^{**}P)(3^{**}Q)(5^{**}R)$ , *Siam J. Sci. Stat. Comp.*, May 1992.
- [124] O. Vossen, H. Müller, P. Schorsch, R.R. Schröder (2000) Understanding the influence of dynamic scattering in electron diffraction and imaging simulations using bacteriorhodopsin, *Proc. of EUREM 12, Brünn, Tschechische Republik*.
- [125] Z.L. Wang (1995) Elastic and Inelastic Scattering in Electron Diffraction and Imaging, Plenum New York.
- [126] Z.L. Wang (1998) An optical potential approach to incoherent multiple thermal diffuse scattering in quantitative HRTEM, *Ultramicroscopy* **74**, 7–26.



- [127] A. Weickenmeier, Dissertation 1991, Institut für Angewandte Physik, TH Darmstadt (D17).
- [128] A. Weickenmeier, H. Kohl (1991) Computation of Absorptive Form Factors for High-Energy Electron Diffraction. *Acta Cryst. A* **47**, 590–603.
- [129] S. Weinberg (1998) *The Quantum Theory of Fields, Vol. I, Foundations*, Cambridge University Press 1995, Reprint 1998.
- [130] H. Weiß, H. Domgörgen, M. Grimm, S. Steiger (2000), Ausgeschlafen, Workstations als Feierabend-Cluster, c't 22/2000, 246–251, Magazin für Computertechnik, Verlag Heinz Heise, Hannover.
- [131] G.C. Wick (1954) The Scattering of neutrons by Systems Containing Light Nuclei, *Phys. Rev.* **94**, 5, 1228–1242.
- [132] H. Yoshioka (1957) Effect of Inelastic Waves on Electron Diffraction. *J. Phys. Soc. Japan* **12**, 6, 618–628.
- [133] J.M. Ziman (1969) *Elements of Advanced Quantum Theory*, Cambridge University Press.



# Danksagung

Mein besonderer Dank gilt Prof. Dr. Harald Rose für seine Unterstützung dieser Arbeit. Seinem energischen Einsatz ist es insbesondere zu verdanken, daß es Ende 1996 möglich wurde, die für diese Arbeit notwendige Hardware in Form einer Workstation mit ausreichender Rechenleistung zu beschaffen. Für ihre finanzielle Unterstützung in dieser Sache sei auch der *Volkswagen Stiftung* gedankt.

Ich danke weiterhin Dr. Rasmus Schröder vom Max-Planck-Institut für Medizinische Forschung, Abteilung Biophysik in Heidelberg und der dortigen Arbeitsgruppe für die gute Zusammenarbeit. Insbesondere danke ich Dr. Eike Ritzel und auch Dipl. Phys. Oliver Vossen für das Testen früher Versionen des Programmes **YaMS**. So konnte die Anzahl der vorhandenen Fehler und Unvollkommenheiten dieses Programmes stark reduziert werden. Ich danke Dr. Eike Ritzel und Dipl. Ing. Petra Behle fernerhin auch für ihre großzügige Hilfe bei der Vorbereitung eines Vortrags anno 1998.

Allen Mitgliedern der Arbeitsgruppe und der Sekretärin Frau Walther danke ich für das angenehme Arbeitsklima und ihre Hilfsbereitschaft.

Ich bedanke mich insbesondere bei Dipl. Phys. Heiko Müller für die vielen Diskussionen zur Bildsimulation, auch wenn wir uns in manchen Dingen letztlich nicht verstanden haben. So konnte ich aus meinen Ideen zu diesem Thema die unstimmmigen herausfiltern.

Bei Dr. Rainer Spehr bedanke ich mich für das Korrekturlesen einer vorläufigen Fassung eines zentralen Teils (Kapitel 2 bis 5) dieser Arbeit und der daran anschließenden Diskussion des Inhalts dieser Teile. Ferner danke ich ihm und Dipl. Phys. Christoph Weißbäcker für weitere „hot fixes“ in letzter Minute. Dr. Peter Hartel danke ich für die Mühe des Korrekturlesens der finalen Version.

Der *Deutschen Forschungsgemeinschaft* und der *Deutschen Gesellschaft für Elektronenmikroskopie* sei für die Finanzierung dieser Arbeit gedankt.

Ferner sei auch all jenen gedankt, die zwar zu dieser Arbeit beigetragen, die aber meinem schwachen Gedächtnis in diesen Dingen entfallen sein sollten.

Schlußendlich will ich es nicht verabsäumen, noch auf die Fenster im südlichen Querschiff der Kathedrale von Chartres und deren historische Bedeutung hinzuweisen.

*Ich erkenne an, dass ich denjenigen grossen Dank schulde, welche zuerst angefangen haben, die seltsame Dunkelheit zu zerstreuen, in welche diese Dinge gehüllt waren, und die Hoffnung erwecken, dass sie sich durch verständliche Gründe erklären lassen.*

(C. Huygens, Abhandlung über das Licht [59], 1690)



# Lebenslauf

*Bene qui latuit, bene vixit*

## Personalien:

Name:	Peter Schorsch
Geburtsdatum:	12. 11. 1964
Geburtsort:	Detmold
Familienstand:	ledig
Staatsangehörigkeit:	deutsch

## Bildungsweg:

1971 – 1973	Grundschule in Blomberg
1973 – 1975	Grundschule in Mörlenbach
1975 – 1981	Haupt- und Realschule in Birkenau Abschluß: Mittlere Reife
1981 – 1984	Überwald-Gymnasium in Wald-Michelbach
1984	Abitur
1984 – 1991	Studium der Physik an der Technischen Hochschule Darmstadt
Juli 1991	Diplom
Seit Juni 1996	Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Angewandte Physik der TU Darmstadt

Darmstadt, den 30. November 2000



## **Eidesstattliche Erklärung**

Ich erkläre hiermit an Eides Statt, daß ich die vorliegende Arbeit unter Verwendung der angegebenen Hilfsmittel selbständig angefertigt und bisher keinen Promotionsversuch unternommen habe.

Darmstadt, den 30. November 2000